

UNIVERSITÀ DEGLI STUDI DI FIRENZE
Facoltà di Scienze Matematiche Fisiche e Naturali
Corso di Laurea in Fisica
Anno Accademico 2002/2003

STUDIO SULLA LOCALIZZAZIONE DELLA
LUCE IN SISTEMI DISORDINATI
UNODIMENSIONALI

Tesi di Laurea
di
Jacopo Bertolotti

Relatore: Dr. Diederik S. Wiersma

Correlatore: Prof. Marcello Colocci

A Lorenzo Frittelli.

Per tutto quello che saresti potuto essere.

Dla Agnieszki.

Za szczęście, jakie mi dajesz.

Indice

Introduzione	I
1 Localizzazione della luce nei sistemi disordinati 1-D	1
1.1 Matrici di trasferimento e le proprietà statistiche dei sistemi disordinati uno dimensionali	2
1.1.1 Un nuovo tipo di matrici di trasferimento	2
1.1.2 Media delle grandezze macroscopiche sul disordine	5
1.2 Resistenza media dei sistemi multistrato	6
2 Risposta in frequenza	13
2.1 Misura degli spettri in trasmissione.	15
2.2 Sistemi di silicio nano-poroso multistrato	18
2.2.1 Disomogeneità laterali dei campioni	20
2.2.2 Variazione dell'angolo di incidenza	21
2.3 Confronto con la teoria.	23
3 Misure risolte in tempo	27
3.1 Calcoli numerici e previsioni teoriche	28
3.2 L'apparato di misura	29
3.2.1 Precisione delle misure ed errori	31
3.3 Risultati sperimentali	33

3.4	Stati delocalizzati nei sistemi disordinati 1-D	37
3.4.1	Modelli e calcoli numerici per gli stati concatenati	39
3.4.2	Stima della probabilità di trovare uno stato concatenato	41
3.4.3	Evidenze sperimentali per gli stati concatenati	45
4	Effetti di tipo LASER nei sistemi disordinati	49
4.1	Descrizione dei sistemi disordinati uno dimensionali con guadagno tra- mite le matrici di trasferimento	50
4.2	Introduzione di un guadagno nei campioni di silicio poroso	53
4.2.1	Stima del numero di fotoni che possono essere assorbiti dal colo- rante	54
4.2.2	Infiltrare il silicio poroso	55
4.3	Misure di emissione dai sistemi disordinati con guadagno	57
4.3.1	Infiltrazione con coloranti infrarossi	58
4.3.2	Infiltrazione con DCM	60
4.3.3	Infiltrazione con Styryl 9M	66
5	Conclusioni	69
A	L'equazione di Helmotz e quella di Shrödinger.	71
B	Il formalismo delle matrici di trasferimento	75
C	Misura di impulsi corti tramite la generazione di frequenza somma	81

Introduzione

L'ottica è sicuramente una delle discipline più antiche fra tutte quelle che compongono la fisica moderna. Le prime osservazioni documentate sulla propagazione della luce risalgono ad Euclide (300 a.c. circa) che per primo mise in evidenza il fatto che essa si muovesse seguendo delle linee rette e studiò il problema della riflessione [1]. Gli sviluppi conseguiti nei secoli successivi riguardarono essenzialmente i principi dell'ottica geometrica fino all'osservazione del fenomeno della diffrazione [2] che diede origine ad un dibattito sulla natura ondulatoria o corpuscolare della luce che durò per oltre due secoli e a cui fu posto fine solo dall'introduzione della meccanica quantistica e del concetto di fotone all'inizio del ventesimo secolo [3].

Il modello diffusivo è un esempio di trattazione corpuscolare della luce che sopravvive e prospera ancora oggi grazie al suo successo nel descrivere una vasta casistica di fenomeni. Infatti, nella maggior parte dei sistemi in cui abbiamo esperienza quotidiana di diffusione multipla (dalle nubi, al latte agli stessi tessuti biologici), la distanza media fra due eventi di diffusione successivi l_{sc} (il cammino libero medio) è molto maggiore della lunghezza d'onda della luce e questo spesso permette di trascurare gli effetti di interferenza mantenendo una descrizione accurata delle proprietà di trasporto della luce. Un'eccezione notevole a questo è rappresentata dal cono di retrodiffusione, che è un effetto di interferenza costruttiva che non svanisce anche in un regime di diffusione multipla [4] [5].

Quando le ipotesi che vi stanno alla base non sono più applicabili il modello diffusivo risulta inadeguato ed è necessario ricorrere a trattazioni differenti: se ad esempio consideriamo il caso in cui la distanza media fra i centri di diffusione sia molto minore della lunghezza d'onda della radiazione incidente abbiamo che le proprietà di trasporto sono descritte dall'ottica geometrica. Sistemi del genere sono estremamente comuni: le strutture atomiche e molecolari hanno naturalmente interdistanze dell'ordine di pochi Angstrom (che è molto minore della lunghezza d'onda tipica della luce visibile) ed in questo caso la luce non riesce a risolvere le discontinuità del mezzo che quindi può essere trattato come essenzialmente omogeneo (approssimazione di mezzo efficiente)

ma le cui caratteristiche macroscopiche, usualmente descritte dall'indice di rifrazione n , dipendono fortemente dalle proprietà microscopiche del mezzo stesso [4].

Andando oltre questi due modelli si entra in un mondo, non ancora ben compreso, dove le proprietà di trasporto dipendono in maniera cruciale dagli effetti di interferenza fra i vari cammini e dove sono presenti un gran numero di fenomeni controintuitivi. Uno di questi è l'inibizione del trasporto per effetto del disordine nota come localizzazione di Anderson.

La localizzazione di Anderson

Nel 1958 P. W. Anderson pubblicò un articolo dove esponeva per la prima volta una trattazione analitica per la propagazione di stati di spin e/o degli elettroni in sistemi impuri (ovvero sistemi in cui è stato introdotto un certo grado di disordine sotto forma di impurità nel potenziale periodico della struttura cristallina) [6]. In questo suo lavoro (che gli varrà il Nobel per la fisica nel 1977) egli suggeriva la possibilità che, in opportune condizioni, il disordine potesse impedire la propagazione degli elettroni e quindi impedire il raggiungimento dell'equilibrio termodinamico del sistema. In queste condizioni le funzioni d'onda degli elettroni sono effettivamente *localizzate* in una regione spazialmente limitata del sistema e questo porta, statisticamente, ad una drastica diminuzione della mobilità. In particolare, mentre un modello diffusivo prevede che la resistenza del sistema cresca linearmente con lo spessore (ovvero il ben noto risultato che due resistenze in serie si sommano), in un sistema che presenti localizzazione di Anderson la resistenza (mediata sulle possibili realizzazioni del disordine) cresce esponenzialmente con lo spessore.

Nonostante le iniziali perplessità del mondo accademico e dello stesso autore [7] un numero sempre crescente di risultati sperimentali e di studi teorici hanno portato la localizzazione di Anderson ad essere pienamente accettata dalla comunità scientifica [9]. Tuttavia ancora oggi la fisica che sta dietro a questi fenomeni non è ben compresa ed esistono ancora molti punti oscuri da chiarire ed ipotesi ancora prive di un'evidenza sperimentale.

Nonostante la teoria della localizzazione sia nata per descrivere la propagazione degli stati di spin e/o degli elettroni nei sistemi disordinati [8] è possibile generalizzarla al caso della propagazione della luce. Infatti l'equazione di Shrödinger stazionaria e l'equazione di Helmholtz possono essere riscritte nella stessa forma funzionale (una semplice dimostrazione nel caso unidimensionale di questo fatto è presentata nell'appendice A) e questo è alla base di un gran numero di analogie fra il mondo dell'elettronica e

dell'ottica. Per esempio esiste un analogo ottico dell'effetto Hall quantistico [10], un analogo ottico della *band-gap* elettronica nei potenziali periodici (in strutture note come cristalli fotonici [11]) e delle oscillazioni di Bloch [12].

Lo scopo di questa tesi è quello di studiare e caratterizzare sperimentalmente gli effetti di localizzazione della luce nei sistemi disordinati 1-D. Ci sono molte ragioni per cui abbiamo deciso di concentrarci sullo studio dei sistemi unidimensionali: innanzi tutto, tramite il formalismo delle matrici di trasferimento (dettagliato nell'appendice B), è possibile compiere calcoli esatti (o almeno stime numeriche con precisione arbitraria) sulla propagazione del campo elettromagnetico nel sistema, cosa che non può essere fatta per sistemi a dimensionalità maggiore. Seconda di poi, con le moderne tecnologie di crescita dei sistemi multistrato, è possibile controllare i parametri di fabbricazione per avere a disposizione i tipi di campione più adatti alle misure che vogliamo compiere. In più, nonostante la relativa semplicità della trattazione teorica, gran parte delle proprietà degli stati localizzati in un sistema 1-D sono analoghe a quelle dei sistemi a due e tre dimensioni e quindi possiamo ottenere informazioni utili anche su di questi.

Organizzazione della tesi

- Nel capitolo 1 costruiremo un formalismo matematico che ci permetta di descrivere le proprietà medie dei sistemi multistrato di silicio poroso che useremo negli esperimenti tramite le matrici di trasferimento ed otterremo una formula analitica che ci permetterà di stimare l'andamento della resistenza ottica del sistema. Daremo così una dimostrazione algebrica che R cresce esponenzialmente con lo spessore L e, in questo modo, dimostreremo che il sistema è in un regime di localizzazione.
- Nel capitolo 2 procederemo ad una caratterizzazione delle proprietà ottiche dei campioni disordinati di silicio poroso e, in particolare, ne studieremo l'andamento di R con lo spessore in modo da verificare sperimentalmente i risultati ottenuti nel primo capitolo.
- Nel capitolo 3 studieremo la risposta in tempo dei sistemi disordinati 1-D ed useremo questo metodo di analisi per ottenere un'evidenza sperimentale della possibilità che all'interno del campione si formino stati estesi nonostante il regime di localizzazione di Anderson.
- Nel capitolo 4 studieremo, sia numericamente sia sperimentalmente, le proprietà di emissione dei sistemi disordinati 1-D nel caso in cui vi venga introdotta una

sorgente di guadagno ed analizzeremo la possibilità di ottenere un effetto di tipo LASER dagli stati localizzati all'interno del campione.

Nelle appendici sono presentate parti del formalismo matematico e dei principi sperimentali utilizzati in questa tesi.

Capitolo 1

Localizzazione della luce nei sistemi disordinati 1-D

Al pari di molti altri fenomeni ben noti in fisica (dalla termodinamica alla condensazione di Bose-Einstein) la localizzazione della luce ha un comportamento molto diverso a seconda della dimensionalità del sistema. In particolare i sistemi 3-D presentano una transizione dal regime diffusivo al regime localizzato quando $k \cdot \ell_{tr} \sim 1$ ovvero quando la lunghezza d'onda della luce nel mezzo diventa paragonabile alla lunghezza di trasporto¹. Anche se un gran numero di studi sono stati compiuti in questi ultimi anni e molti risultati interessanti sono stati ottenuti in questo campo [9] [13] questa transizione non è facile da ottenere sperimentalmente perché, per avere ℓ_{tr} abbastanza piccolo, è necessario ridurre dimensioni ed interdistanze fra i centri di diffusione ed aumentare il contrasto fra il loro indice di rifrazione e quello del mezzo circostante.

Al contrario nei sistemi disordinati unidimensionali la localizzazione di Anderson è attesa per ogni grado di disordine e contrasto degli indici di rifrazione; questo, unito alla maggior semplicità matematica e concettuale, ci offre un ottimo sistema per studiare le proprietà generali degli stati localizzati senza molte delle complicazioni associate ai sistemi a dimensionalità maggiore.

¹Mentre la lunghezza di diffusione l_{sc} è definita come la distanza media fra due successivi eventi di diffusione la lunghezza di trasporto l_{tr} è definita come la distanza media fra due eventi di diffusione nei quali la direzione del vettore \vec{k} viene resa casuale. In moltissimi casi $l_{sc} = l_{tr}$ ma, quando la sezione d'urto dell'evento di diffusione è fortemente anisotropa (come nel caso dei cristalli liquidi), la differenza fra queste due grandezze può diventare importante.

In questo capitolo costruiremo (sulla base del lavoro fatto da Pendry in [14]) un formalismo matematico che ci permetta di dimostrare in maniera rigorosa la localizzazione dei sistemi multistrato che andremo poi a studiare sperimentalmente e che ci permetta di analizzare alcune importanti proprietà degli stati localizzati.

1.1 Matrici di trasferimento e le proprietà statistiche dei sistemi disordinati uno dimensionali

La tecnica delle matrici di trasferimento (descritta in dettaglio nell'appendice B) permette di calcolare esattamente (entro ipotesi di ampia validità) la propagazione del campo elettromagnetico nel campione ed alcuni parametri di interesse come la trasmissività e la riflettività. Non appena se ne conoscano le caratteristiche microscopiche (spessore ed indice di rifrazione di ogni strato), basta moltiplicare fra loro di un numero di matrici 2×2 pari al numero di strati di cui è composto il campione stesso. Da un punto di vista pratico questo non pone alcun problema (sono difatti possibili simulazioni numeriche al calcolatore di precisione arbitraria) ma, per mantenere una visione chiara della fisica alla base del problema è più conveniente cercare di descrivere il sistema tramite delle proprietà statistiche e cercare di ottenere una trattazione analitica del problema.

1.1.1 Un nuovo tipo di matrici di trasferimento

Supponiamo di essere in grado di calcolare i parametri di trasmittanza e riflettanza di uno strato arbitrario del sistema grazie alle matrici di trasferimento \mathcal{M} (definite nell'appendice B). Questa conoscenza ci permette di definire un nuovo tipo di matrici di trasferimento (che chiameremo X) che ci saranno particolarmente utili nel seguito. Quest'ultime, invece che propagare il campo elettrico e magnetico fra due interfacce adiacenti, mettono in relazione il campo entrante ed uscente dalle due facce di uno strato.

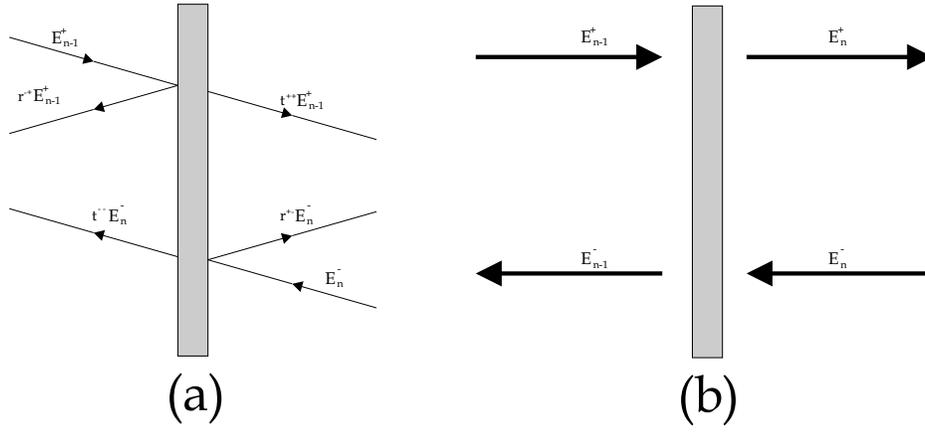


Figura 1.1: Diagramma delle onde entranti ed uscenti da un singolo strato del sistema. I segni $+$ e $-$ indicano la direzione di propagazione dell'onda E (positiva quando si propaga verso destra e viceversa); con questa notazione t^{++} indica il coefficiente di trasmissione da sinistra a destra, t^{--} quello da destra a sinistra ed analogamente le due riflettanze r^{+-} e r^{-+} rappresentano rispettivamente, la probabilità che un'onda proveniente da destra venga riflessa verso sinistra e che un'onda proveniente da sinistra venga riflessa verso destra. L'indice n numera gli strati.

Per scriverle parto dall'osservazione (vedi fig. 1.1) che

$$\begin{aligned}
 E_{n-1}^+ &= r^{-+} E_{n-1}^+ + t^{--} E_n^- \\
 E_n^+ &= r^{+-} E_n^- + t^{++} E_{n-1}^- .
 \end{aligned}
 \tag{1.1}$$

Questo è a tutti gli effetti un sistema lineare e quindi può essere riscritto sotto forma di matrici come

$$\begin{aligned}
 \begin{pmatrix} 1 & -r^{+-} \\ 0 & t^{--} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_n^+ \\ E_n^- \end{pmatrix} &= \begin{pmatrix} t^{++} & 0 \\ -r^{-+} & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_{n-1}^+ \\ E_{n-1}^- \end{pmatrix} \Rightarrow \\
 \Rightarrow \begin{pmatrix} E_n^+ \\ E_n^- \end{pmatrix} &= \begin{pmatrix} t^{++} - \frac{r^{+-} \cdot r^{-+}}{t^{--}} & \frac{r^{+-}}{t^{--}} \\ -\frac{r^{-+}}{t^{--}} & \frac{1}{t^{--}} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_{n-1}^+ \\ E_{n-1}^- \end{pmatrix} = X_n \begin{pmatrix} E_{n-1}^+ \\ E_{n-1}^- \end{pmatrix} .
 \end{aligned}
 \tag{1.2}$$

La forma di X_n può essere semplificata facendo alcune considerazioni: in un sistema non assorbente (questa è un'ipotesi cruciale per la trattazione che segue) vale il principio di reversibilità del cammino ottico e quindi $t^{++} = t^{--} = t$. Notiamo che questo implica

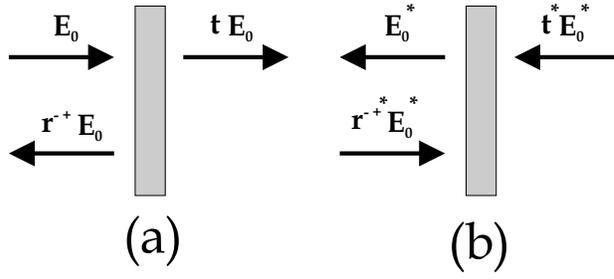


Figura 1.2: *Caso di un raggio luminoso che incide da sinistra sul campione e caso complesso coniugato (che per onde piane è equivalente all'inversione temporale).*

necessariamente $|r^{+-}| = |r^{-+}|$ mentre le fasi delle due riflettività possono essere diverse.

Per mettere in relazione r^{+-} con r^{-+} osservo che, come mostrato in figura 1.2, le proprietà di simmetria del sistema permettono di scrivere:

$$0 = r^{+-} t^* + t (r^{-+})^*$$

ovvero

$$\frac{(r^{+-})^*}{t^*} = -\frac{r^{-+}}{t} . \quad (1.3)$$

Moltiplicando da entrambi i lati per r^{+-} e sfruttando la relazione

$$r^{+-} \cdot (r^{+-})^* = \|r\|^2 = 1 - \|t\|^2 = 1 - t \cdot t^*$$

si ottiene

$$\frac{1}{t^*} = t - \frac{r^{+-} \cdot r^{-+}}{t} . \quad (1.4)$$

Sostituendo l'eq. 1.3 e l'eq. 1.4 nell'equazione 1.2 la forma della matrice di trasferimento si semplifica notevolmente²

$$X_n = \begin{pmatrix} \frac{1}{t^*} & \frac{r}{t} \\ \frac{r^*}{t^*} & \frac{1}{t} \end{pmatrix} . \quad (1.5)$$

²Nel seguito si userà sistematicamente la notazione $r = r^{+-}$.

1.1.2 Media delle grandezze macroscopiche sul disordine

Le matrici di trasferimento sono uno strumento comodo e conveniente per trattare il problema della media su tutte le possibili realizzazioni del disordine, che invece è uno dei problemi principali nella formulazione (molto usata nella descrizione dei sistemi due e tre dimensionali) attraverso le funzioni di Green [4].

Assumendo che tutti gli strati che compongono il campione seguano la stessa statistica e che ciascuno di essi sia statisticamente indipendente dagli altri, la media degli elementi che compongono una matrice di trasferimento può essere scritta come

$$\overline{[\tilde{X}]_{i,j}} = \overline{\left[\prod_{n=1}^N X_n \right]_{i,j}} = \left[\overline{\prod_{n=1}^N X_n} \right]_{i,j} = \left[(\overline{X_n})^N \right]_{i,j} \quad (1.6)$$

ovvero la media su tutto il campione è data dalla media sulle possibili realizzazioni di un singolo strato.

Quindi per ottenere il valor medio di una certa grandezza è necessario trovare una matrice di trasferimento che la contenga in uno (o più) dei suoi elementi ed applicare l'equazione 1.6. A questo proposito le matrici \mathcal{M} non sono particolarmente utili dato che i loro elementi non contengono (almeno non in maniera esplicita) alcuna grandezza macroscopica. Al contrario le matrici X contengono nei loro elementi informazioni utili sulla trasmittanza e sulla riflettanza del campione. Noi siamo però interessati ad una grandezza diversa per descrivere le proprietà della propagazione della luce in campioni disordinati: la resistenza adimensionale $R = \frac{1}{\|t\|^2}$.

Questa, essendo un termine del secondo ordine, non compare esplicitamente nelle matrici X e non è possibile ottenerla dalle medie indipendenti dei termini $\frac{1}{t}$ e $\frac{1}{t^*}$ perché la media del prodotto è diversa dal prodotto delle medie. La soluzione è quella di costruire una matrice di trasferimento generalizzata, data dal prodotto cartesiano di due matrici X , che contenga i termini del secondo ordine³. In realtà questo procedimento è più complicato di quanto possa apparire a prima vista: in generale il prodotto cartesiano fra matrici non gode della proprietà commutativa, tuttavia il caso $X \otimes X$ (e più in generale il prodotto diretto fra un qualsiasi numero di matrici identiche) è un'eccezione a questa regola. Questo porta alcune conseguenze notevoli, analoghe a

³Questo processo è iterabile per ottenere matrici di trasferimento che contengano termini di ogni ordine.

quelle che si hanno in meccanica quantistica quando si studia il caso di due particelle identiche: siccome $\overline{X}_1 = \overline{X}_2$ si ha che $\overline{X}_1 \otimes \overline{X}_2$ è invariante per permutazione di \overline{X}_1 con \overline{X}_2 e quindi deve essere un autostato dell'operatore di permutazione \hat{P} . D'altra parte $\hat{P}^2 = 1$ e quindi ammette come autovalori $P = \pm 1$; proiettando lo spazio di Hilbert dato da $\overline{X}_1 \otimes \overline{X}_2$ su questa base lo si può decomporre in due sottospazi ortogonali corrispondenti alla simmetria di Fermi ed a quella di Bose.

Nel nostro caso, dove le X sono matrici 2×2 , si ottiene tramite un determinante di Slater che la componente antisimmetrica è data da

$$\begin{aligned} X_A^{(2)} &= \frac{1}{2} \sum_{j,k,j',k'} (\delta_{1,j}\delta_{2,k} - \delta_{1,k}\delta_{2,j}) X_{j,j'} \otimes X_{k,k'} (\delta_{1,j'}\delta_{2,k'} - \delta_{1,k'}\delta_{2,j'}) \\ &= \frac{1}{2} (X_{1,1}X_{2,2} - X_{1,2}X_{2,1} + X_{2,2}X_{1,1} - X_{2,1}X_{1,2}) \\ &= \det(X) = 1, \end{aligned} \tag{1.7}$$

che può essere sempre tralasciata in quanto non aggiunge niente al problema.

Non siamo quindi interessati a tutta la matrice $X^{(2)}$ ma solo la sua parte simmetrica che sarà una matrice 3×3 . In [14] Pendry dimostra che questa matrice può essere scritta come

$$X_S^{(2)} = \begin{pmatrix} \frac{1}{(t^*)^2} & \frac{2r}{|t|^2} & \left(\frac{r}{t}\right)^2 \\ \frac{r^*}{(t^*)^2} & \left|\frac{r}{t}\right|^2 + \frac{1}{|t|^2} & \frac{r}{t^2} \\ \left(\frac{r^*}{t^*}\right)^2 & \frac{2r^*}{|t|^2} & \frac{1}{t^2} \end{pmatrix} \tag{1.8}$$

la resistenza adimensionale è qui contenuta nel termine centrale

$$\left|\frac{r}{t}\right|^2 + \frac{1}{|t|^2} = \frac{|r|^2 + 1}{|t|^2} = \frac{2 - |t|^2}{|t|^2} = 2R - 1$$

e quindi si può applicare l'equazione 1.6 per ottenere la media di R .

1.2 Resistenza media dei sistemi multistrato

I sistemi da noi studiati sono composti da due tipi di strati, denominati A e B, con indici di rifrazione diversi e spessore $d = \frac{\lambda_0}{4n}$ dove λ_0 (detta lunghezza d'onda centrale) è stata

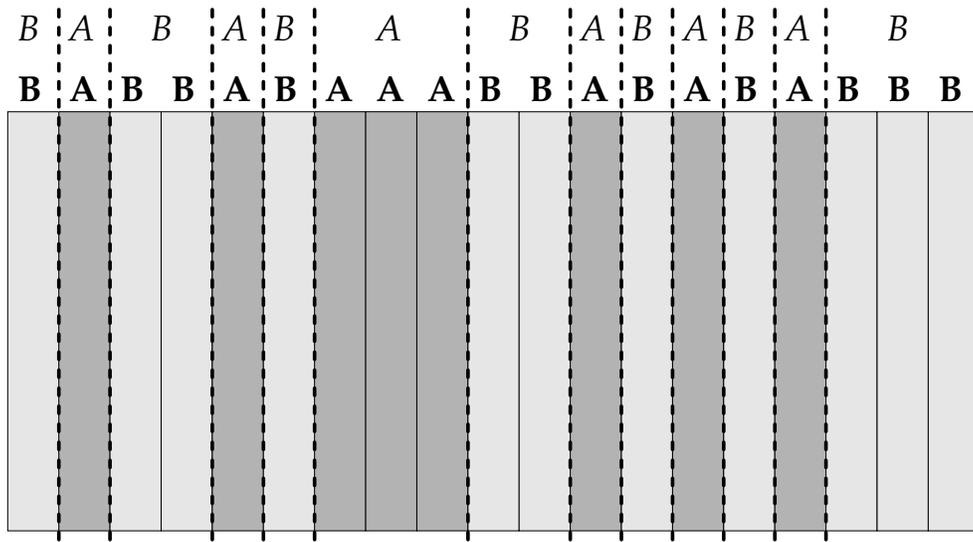


Figura 1.3: *Un insieme disordinato di strati diversi può essere raggruppato in blocchi di strati uguali ed adiacenti.*

posta pari a $1,5 \mu\text{m}$. È bene notare che questa scelta di d implica che il cammino ottico, e quindi anche la differenza di fase, sia sempre lo stesso fra due interfacce successive. Organizzando questi strati in una struttura ordinata si possono ottenere specchi di Bragg e microcavità; noi abbiamo invece introdotto un disordine posizionale dando ad ogni strato una probabilità del 50% di essere di un tipo o dell'altro indipendentemente dalla natura degli strati che lo circondano. Il risultato è una successione disordinata e casuale di indici di rifrazione diversi, ovvero una successione disordinata di coefficienti di trasmittanza e di riflettanza che però sottintende un ordine parziale dovuto al fatto che gli spessori dei singoli strati non sono stati resi casuali e quindi la differenza di fase fra due interfacce successive è sempre la stessa.

Ai fini della trattazione teorica non è conveniente prendere i singoli strati come unità logica; risulta invece più pratico raggruppare gli strati adiacenti con eguale indice di rifrazione in dei blocchi che chiameremo **A** e **B**. Ciascun blocco **A** sarà composto da un numero \mathcal{N}_A di strati di tipo A ed avrà quindi uno spessore pari a $\mathcal{N}_A \cdot d_A$. Il vantaggio di lavorare con questi blocchi è che (trascurando il primo e l'ultimo strato) ogni gruppo **A** sarà sicuramente circondato da strati di tipo B e viceversa; la matrice di trasferimento

\mathcal{M} assume quindi la forma

$$\mathcal{M}_{\mathbf{A}} = \begin{pmatrix} \cos \delta_{\mathbf{A}} & i \frac{c}{n_{\mathbf{A}}} \sin \delta_{\mathbf{A}} \\ i \frac{c}{n_{\mathbf{A}}} \sin \delta_{\mathbf{A}} & \cos \delta_{\mathbf{A}} \end{pmatrix} \quad (1.9)$$

(dove $\delta_{\mathbf{A}} = 2\pi \frac{n_{\mathbf{A}}}{c} \nu \mathcal{N}_{\mathbf{A}} d_{\mathbf{A}}$ e gli indici di rifrazione sono reali perché non c'è assorbimento) ed utilizzando le equazioni B.11 si ottiene

$$t_{\mathbf{A}} = \frac{1}{\cos \delta_{\mathbf{A}} - i \left(\frac{n_{\mathbf{B}}^2 + n_{\mathbf{A}}^2}{2n_{\mathbf{A}}n_{\mathbf{B}}} \right) \sin \delta_{\mathbf{A}}} \quad (1.10)$$

$$r_{\mathbf{A}} = \frac{-i \left(\frac{n_{\mathbf{B}}^2 - n_{\mathbf{A}}^2}{2n_{\mathbf{A}}n_{\mathbf{B}}} \right) \sin \delta_{\mathbf{A}}}{\cos \delta_{\mathbf{A}} - i \left(\frac{n_{\mathbf{B}}^2 + n_{\mathbf{A}}^2}{2n_{\mathbf{A}}n_{\mathbf{B}}} \right) \sin \delta_{\mathbf{A}}} \quad (1.11)$$

ovvero

$$X_{\mathbf{A}} = \cos \delta_{\mathbf{A}} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix} - i \sin \delta_{\mathbf{A}} \begin{pmatrix} -\frac{n_{\mathbf{B}}^2 + n_{\mathbf{A}}^2}{2n_{\mathbf{A}}n_{\mathbf{B}}} & \frac{n_{\mathbf{B}}^2 - n_{\mathbf{A}}^2}{2n_{\mathbf{A}}n_{\mathbf{B}}} \\ -\frac{n_{\mathbf{B}}^2 - n_{\mathbf{A}}^2}{2n_{\mathbf{A}}n_{\mathbf{B}}} & \frac{n_{\mathbf{B}}^2 + n_{\mathbf{A}}^2}{2n_{\mathbf{A}}n_{\mathbf{B}}} \end{pmatrix}. \quad (1.12)$$

L'equivalente per i blocchi di tipo \mathbf{B} è uguale ma con gli indici A e B scambiati.

Per fare la media sulle realizzazioni del disordine è necessario mediare su tutti i possibili \mathcal{N} (il numero di strati elementari che compongono i blocchi) e su tutti i possibili indici di rifrazione (che nel nostro caso sono solo due: 1,4 e 2,1). Possiamo notare che la scelta sugli spessori ($d = \frac{\lambda_0}{4n}$) rende δ indipendente dall'indice di rifrazione. Notiamo anche che i termini fuori dalla diagonale principale di $X_{\mathbf{A}}$ sono antisimmetrici nello scambio di $n_{\mathbf{A}}$ con $n_{\mathbf{B}}$ e quindi, per \mathcal{N} fissato, la media sugli indici di rifrazione li elide esattamente.

Otteniamo quindi

$$\overline{X} = \langle \cos \delta \rangle \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix} - i \langle \sin \delta \rangle \begin{pmatrix} -\frac{n_B^2 + n_A^2}{2n_A n_B} & 0 \\ 0 & \frac{n_B^2 + n_A^2}{2n_A n_B} \end{pmatrix} \quad (1.13)$$

dove le $\langle . \rangle$ stanno ad indicare la media pesata su tutti i possibili \mathcal{N} .

Per calcolare la resistenza dei campioni utilizziamo la matrice di trasferimento generalizzata (vedi l'equazione 1.8)

$$X_{S_A}^{(2)} = \begin{pmatrix} -\frac{(2in_A n_B \cos \delta_A - \alpha \sin \delta_A)^2}{4n_A^2 n_B^2} & -i2\beta_1 \sin \delta_A (\cos \delta_A + i \sin \delta_A \alpha_1) & -\beta_1^2 \sin^2 \delta_A \\ i\beta_1 \sin \delta_A (\cos \delta_A + i \sin \delta_A \alpha_1) & 2 \cos^2 \delta_A - 1 + 2\alpha_1^2 \sin^2 \delta_A & -i\beta_1 \sin \delta_A (\cos \delta_A + i \sin \delta_A \alpha_1) \\ -\beta_1^2 \sin^2 \delta_A & +2i\beta_1 \sin \delta_A (\cos \delta_A - i\alpha_1 \sin \delta_A) & -\frac{(2in_A n_B \cos \delta_A + \alpha \sin \delta_A)^2}{4n_A^2 n_B^2} \end{pmatrix}$$

dove, per brevità, abbiamo definito

$$\begin{aligned} \alpha &= n_A^2 + n_B^2 \\ \alpha_1 &= \frac{n_A^2 + n_B^2}{2n_A n_B} \\ \beta &= n_A^2 - n_B^2 \\ \beta_1 &= \frac{n_A^2 - n_B^2}{2n_A n_B}, \end{aligned}$$

che, dopo la media sugli indici di rifrazione, assume la forma

$$\begin{pmatrix} \langle \cos^2 \delta \rangle + 2i\alpha_1 \langle \cos \delta \cdot \sin \delta \rangle - \alpha_1^2 \langle \sin^2 \delta \rangle & 0 & -\beta_1^2 \langle \sin^2 \delta \rangle \\ 0 & 2 \langle \cos^2 \delta \rangle - 1 + 2\alpha_1^2 \langle \sin^2 \delta \rangle & 0 \\ -\beta_1^2 \langle \sin^2 \delta \rangle & 0 & \langle \cos^2 \delta \rangle - 2i\alpha_1 \langle \cos \delta \cdot \sin \delta \rangle - \alpha_1^2 \langle \sin^2 \delta \rangle \end{pmatrix}.$$

Una proprietà interessante di questa matrice è che $\left[\overline{X_{S_1}^{(2)}} \right]_{2,2}^N = \left(\left[X_{S_1}^{(2)} \right]_{2,2} \right)^N$ e quindi possiamo considerare solo il termine centrale e scrivere la resistenza adimensionale media come:

$$\begin{aligned}
\bar{R} &= \left(\frac{1}{2} \left[X_{S1}^{(2)} \right]_{2,2} + \frac{1}{2} \right)^N = \\
&= \left(\frac{1}{2} \left(2 \langle \cos^2 \delta \rangle - 1 + 2 \left(\frac{n_A^2 + n_B^2}{2n_A n_B} \right)^2 \langle \sin^2 \delta \rangle \right) + \frac{1}{2} \right)^N = \quad (1.14) \\
&= \left(\langle \cos^2 \delta \rangle + \left(\frac{n_A^2 + n_B^2}{2n_A n_B} \right)^2 \langle \sin^2 \delta \rangle \right)^N .
\end{aligned}$$

Ricordandosi che la statistica di \mathcal{N} è data dal fatto che ogni strato ha una probabilità del 50% di essere di tipo A o di tipo B possiamo calcolare $\langle \cos^2 \delta \rangle$ e $\langle \sin^2 \delta \rangle$

$$\langle \sin^2 \delta \rangle = \frac{\sum_{j=1}^{\infty} \frac{1}{2^{j-1}} \sin^2 \left(j \frac{2\pi\lambda_0}{4\lambda} \right)}{\sum_{j=1}^{\infty} \frac{1}{2^{j-1}}} = \frac{1}{4} \left(3 + \frac{1}{1 - 2e^{-\frac{i\pi\lambda_0}{\lambda}}} + \frac{2}{e^{-\frac{i\pi\lambda_0}{\lambda}} - 2} \right) \quad (1.15)$$

$$\langle \cos^2 \delta \rangle = \frac{\sum_{j=1}^{\infty} \frac{1}{2^{j-1}} \cos^2 \left(j \frac{2\pi\lambda_0}{4\lambda} \right)}{\sum_{j=1}^{\infty} \frac{1}{2^{j-1}}} = \frac{1}{4} \left(1 - \frac{2}{e^{-\frac{i\pi\lambda_0}{\lambda}} - 2} + \frac{1}{2e^{-\frac{i\pi\lambda_0}{\lambda}} - 1} \right) . \quad (1.16)$$

A prima vista potrebbe sembrare sorprendente che queste medie convergano a delle funzioni di λ invece che a dei numeri ma in realtà ci attendevamo un risultato del genere. Per via delle nostre scelte avevamo $\delta = \frac{\pi\lambda_0}{2c} \nu \mathcal{N}$ e quindi tutte le frequenze che sono un multiplo intero di $\frac{2c}{\lambda_0}$ saranno risonanti nel sistema e non vedranno il disordine (per queste frequenze il sistema sarà trasparente qualunque sia il disordine che abbiamo introdotto). In ogni caso nella regione di lunghezze d'onda interessata dai nostri esperimenti (circa da 1 a 2 μm) queste funzioni sono quasi piatte e questo ci permette di darne una stima.

In un regime di propagazione diffusiva la resistenza è attesa crescere linearmente con lo spessore del campione [4] mentre risulta evidente dall'equazione 1.14 è che \bar{R} cresce

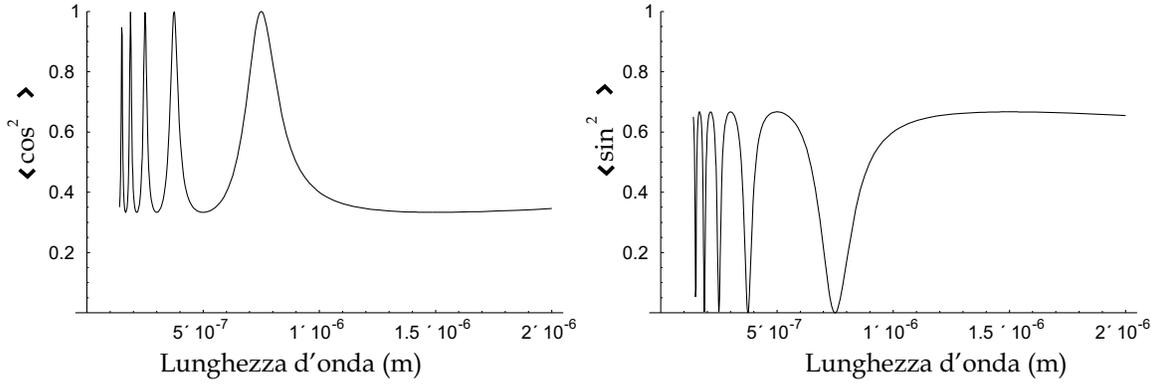


Figura 1.4: Per frequenze multiple di $\frac{2c}{\lambda_0} \sin \delta$ e $\cos \delta$ sono sempre uguali, rispettivamente, a zero ed uno. Per queste frequenze il sistema è sempre trasparente indipendentemente dal disordine e quindi queste frequenze corrispondono sempre a stati non localizzati.

esponenzialmente con N . Questo è quello che si intende con il termine "localizzazione". La grandezza caratteristica che descrive la propagazione della luce in un regime localizzato è la lunghezza di localizzazione ξ definita attraverso la relazione $\overline{R} = e^{\frac{L}{\xi}}$ e che possiamo scrivere come:

$$\begin{aligned} \xi &= \frac{L}{\ln \overline{R}} = \frac{N \langle \mathcal{N} \rangle \langle d \rangle}{\ln \left(\langle \cos^2 \delta \rangle + \left(\frac{n_A^2 + n_B^2}{2n_A n_B} \right)^2 \langle \sin^2 \delta \rangle \right)^N} = \\ &= \frac{\langle \mathcal{N} \rangle \langle d \rangle}{\ln \left(\langle \cos^2 \delta \rangle + \left(\frac{n_A^2 + n_B^2}{2n_A n_B} \right)^2 \langle \sin^2 \delta \rangle \right)}. \end{aligned} \quad (1.17)$$

La lunghezza di localizzazione rappresenta le dimensioni tipiche della zona all'interno della quale la luce viene confinata. Dall'equazione 1.17 possiamo notare che per ogni valore degli indici di rifrazione questa è una grandezza ben definita (l'argomento del logaritmo è sempre maggiore di uno e quindi ξ è definita positiva) ma che, per $n_A \sim n_B$ diverge a $+\infty$. Questo comportamento è tipico di un gran numero di sistemi, basta pensare alle fibre ottiche, che sono essenzialmente unidimensionali ma dove la lunghezza di localizzazione (dovuta all'inevitabile disordine delle imperfezioni) è maggiore o molto maggiore delle dimensioni del sistema stesso e quindi permettono la propagazione libera della luce.

Tabella 1.1: *Stime realistiche per le grandezze presenti nell'equazione 1.17. A $\langle \mathcal{N} \rangle$ non è associato alcun errore perché non è un parametro sperimentale ma è univocamente definito dalla statistica che abbiamo scelto per gli strati del sistema. Non è riportato alcun valore per $\langle \cos^2 \delta \rangle$ perché è una funzione di $\langle \sin^2 \delta \rangle$.*

Grandezza	Stima	Errore
$\langle d \rangle$	222,4 nm	10%
n_A	1,4	0,1
n_B	2,1	0,1
$\langle \sin^2 \delta \rangle$	0,6	0,01
$\langle \mathcal{N} \rangle$	2	0

Dalla conoscenza dei processi di produzione dei campioni possiamo dare una stima delle grandezze presenti nell'equazione 1.17 ed otteniamo

$$\xi = 4,8\mu m \pm 1,1\mu m . \quad (1.18)$$

Da un punto di vista pratico la verifica dell'equazione 1.17 così come è scritta non è fattibile in quanto richiederebbe, a frequenza fissata, la misura della trasmissione di un gran numero di campioni per ciascuno spessore. Quello che invece si può fare è di prendere un numero limitato di campioni e di fare questa misura per tante frequenze diverse, ovvero verificare che la trasmissione integrata decresca esponenzialmente con il numero degli strati con un coefficiente pari a $\frac{1}{\xi}$.

Dobbiamo però stare attenti che la lunghezza di localizzazione così definita è una grandezza che converge lentamente (\bar{R} è dominata da eventi molto rari [13] [14]) e quindi l'estrapolazione di ξ dall'analisi di un numero limitato di campioni potrebbe non coincidere esattamente con la previsione teorica.

Capitolo 2

Risposta in frequenza

Come abbiamo visto la localizzazione della luce in un sistema disordinato è caratterizzata dal fatto che \overline{R} cresca esponenzialmente con N invece che linearmente come ci aspetteremmo da una propagazione diffusiva. Un'altra proprietà dei sistemi localizzati che è possibile dimostrare [4] [13] [14] è che la distribuzione della resistenza ha delle fluttuazioni molto forti attorno alla media e che queste fluttuazioni non svaniscono all'aumentare di N . Questo vuol dire che, per N grande, è molto improbabile che il coefficiente di trasmissione $T = \|t\|^2$ per una data lunghezza d'onda sia significativamente diverso da zero, tuttavia per quelle poche λ il sistema presenterà $T \simeq 1$.

Possiamo dare un'interpretazione fisica qualitativa a questo risultato matematico pensando che se un'onda non può propagarsi all'interno di un mezzo (come abbiamo dimostrato accadere nei nostri sistemi disordinati unodimensionali) e non c'è assorbimento, per la conservazione dell'energia, verrà riflessa. Ci saranno però delle frequenze che verranno "catturate" in una risonanza all'interno del campione, cioè delle frequenze che, una volta entrate per effetto *tunnel*, non potendosi propagare in nessuna direzione rimarranno localizzate in una regione dell'ordine di ξ finché non si accoppieranno con l'esterno ed usciranno dal sistema. Questo comportamento può, in prima approssimazione, essere assimilato a quello di una microcavità, bisogna però ricordarsi che in un sistema disordinato non è presente alcuna microcavità e la luce rimane intrappolata ad opera esclusiva del disordine.

Facendo una misura dello spettro in trasmissione di un sistema disordinato 1-D ci

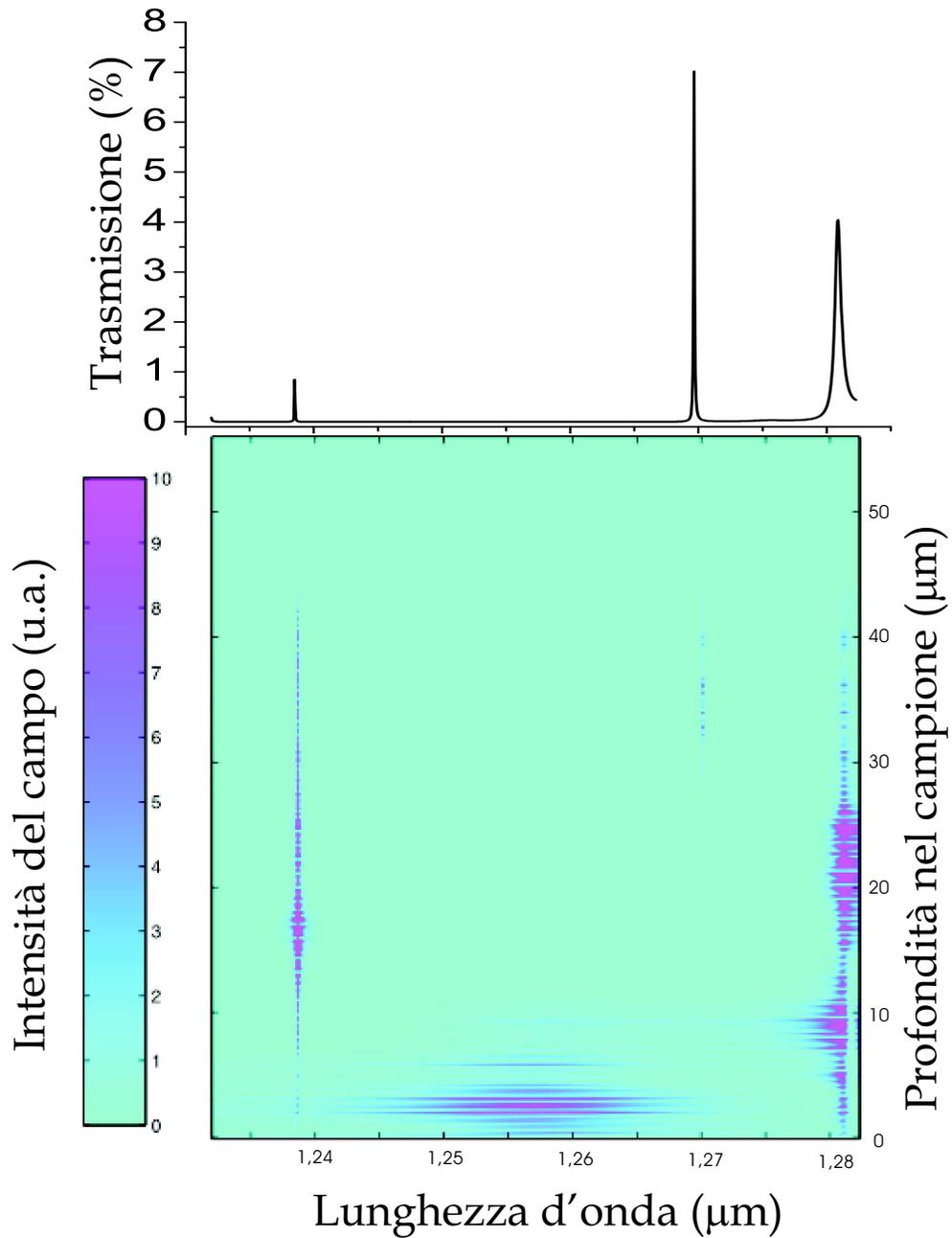


Figura 2.1: Simulazione tramite matrici di trasferimento di un campione di 250 strati. L'intensità del campo all'interno del campione è riportata in funzione della profondità e della lunghezza d'onda. In alto è riportata la trasmissione ottenuta dalla stessa simulazione per lo stesso intervallo di λ . Notare come agli stati che non riescono a penetrare all'interno del campione (ad esempio $\lambda \simeq 1255 \text{ nm}$) non corrisponda alcun picco di trasmissione.

aspettiamo quindi di trovare che T è circa nullo per la maggior parte delle lunghezze d'onda e di trovare un certo numero di picchi molto stretti con $T \simeq 1$ a frequenze casuali e scarsamente predicibili (perché dipendono fortemente dai dettagli del disordine). Dobbiamo però considerare che i nostri campioni presentano delle perdite (assorbimento e perdite per diffusione) e quindi gli stati fortemente localizzati, che corrispondono a cammini molto lunghi all'interno del campione, verranno fortemente depressi.

2.1 Misura degli spettri in trasmissione.

Per la misura abbiamo illuminato il campione con una lampada alogena [16] accoppiata in una fibra ottica dal diametro di $600 \mu m$; la luce uscente dalla fibra è stata poi fatta passare da un telescopio (descritto in figura 2.2) per ottenere un fuoco sul campione di $300 \mu m$ di diametro, focalizzata sulle fenditure di un monocromatore [17] e quindi misurata tramite un rivelatore a fotodiode [18] collegato ad un *lock-in*. Per ogni spettro in trasmissione abbiamo poi preso, nelle stesse condizioni di misura, lo spettro della lampada (di cui un esempio è mostrato in figura 2.3) in modo da poter ricavare la trasmissione assoluta; una selezione di queste misure per campioni diversi è mostrata nel grafico 2.4.

Si può vedere che, all'aumentare del numero di strati che compongono il sistema misu-

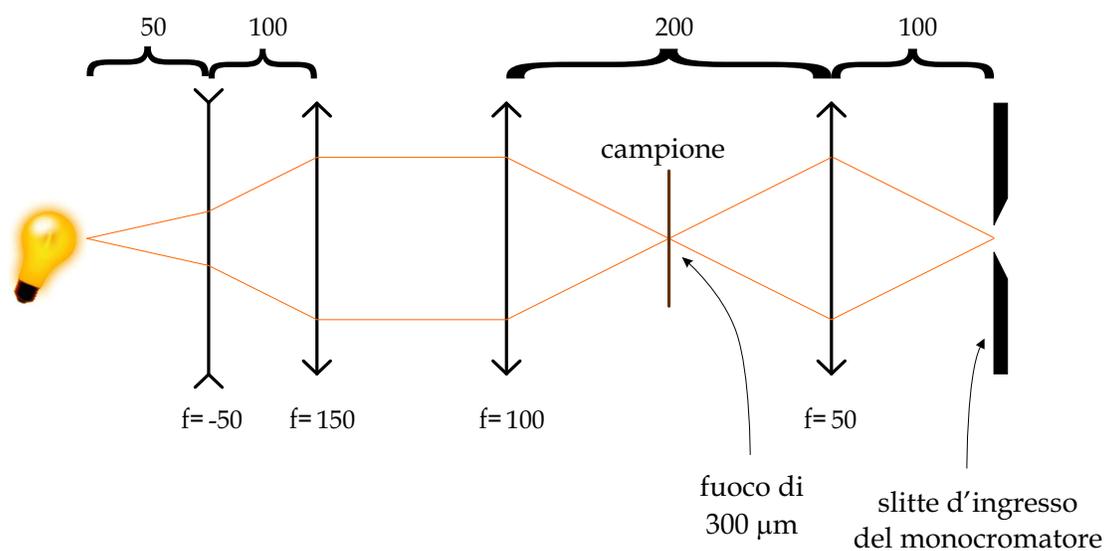


Figura 2.2: Diagramma del sistema di raccolta della luce per le misure dello spettro in trasmissione. Tutte le distanze (e le lunghezze focali delle lenti) sono in mm.

Tabella 2.1: *Specifiche dei componenti principali del sistema di misura degli spettri in trasmissione*

Lampada		Monocromatore		Fotodiodo	
Modello	<i>LS-1 Tungsten Halogen Light Source</i>	Modello	<i>Chromex 250 is/sm</i>	Modello	<i>Hamamatsu P4638</i>
Potenza emessa	6.5W	Risoluzione massima	0.1 nm	Sensibilità	$4.3 \cdot 10^7 \frac{V}{W}$
Intervallo spettrale emesso	da 360 nm a $2 \mu m$	Intervallo spettrale di funzionamento	da 400 nm a $2 \mu m$	Densità spettrale di rumore	$2.025 \cdot 10^{-9} \frac{V^2}{Hz}$

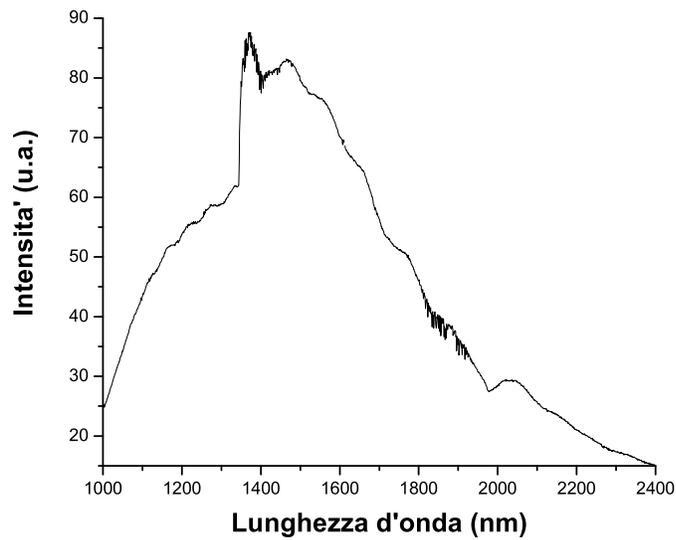


Figura 2.3: *Spettro di emissione della lampada misurato con il nostro apparato. La risoluzione è 1 nm.*

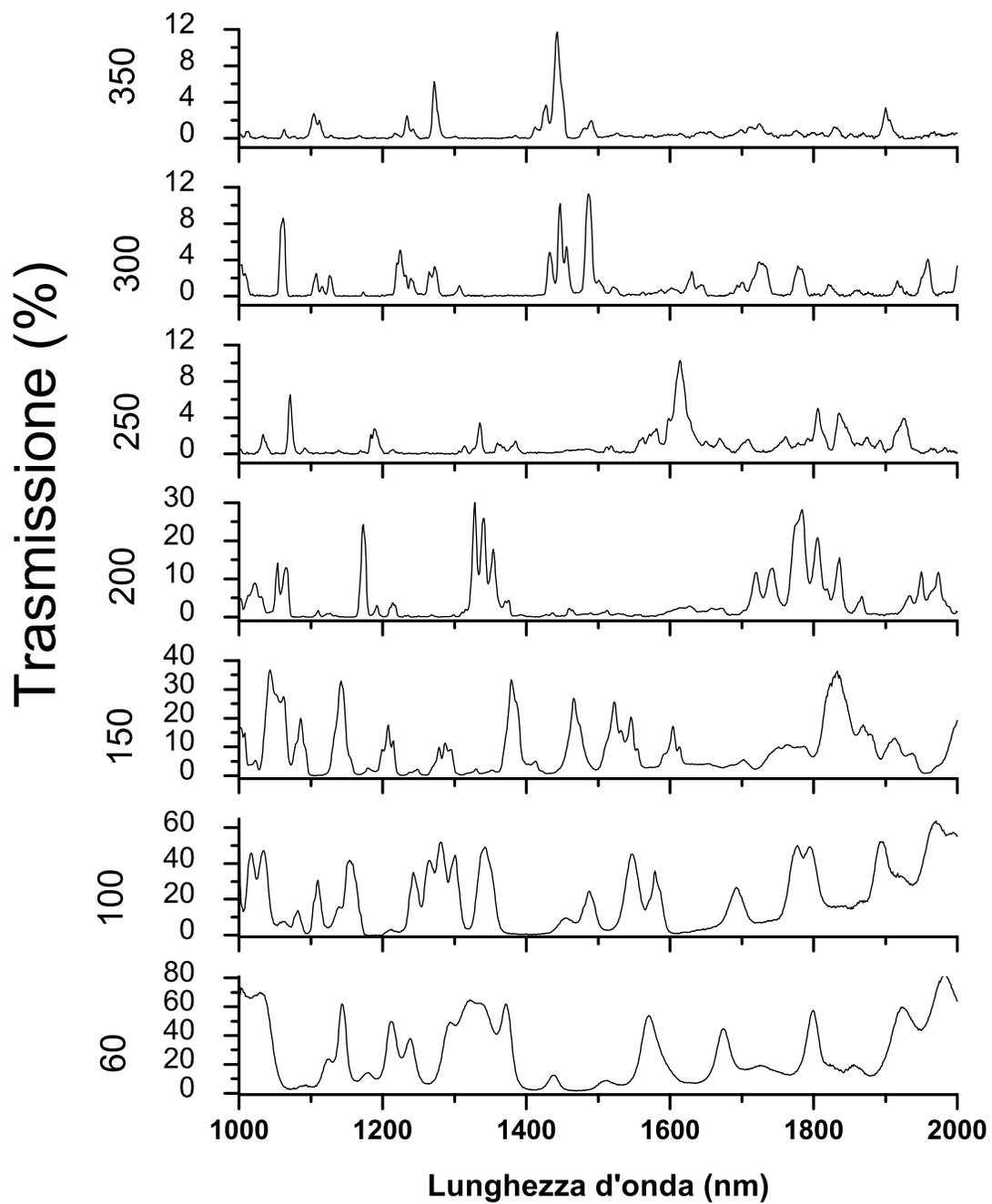


Figura 2.4: Spettro in trasmissione di alcuni campioni. Il numero degli strati che formano il campione aumenta dal basso verso l'alto. La risoluzione di ciascuna misura è 1 nm.

rato i picchi in trasmissione diventano sempre più rari e stretti. È bene notare che tutte queste misure sono state fatte con la risoluzione di 1 nm e quindi siamo probabilmente nella situazione di non poter risolvere completamente i picchi più stretti che quindi appaiono molto più bassi di quanto non siano in realtà ¹.

2.2 Sistemi di silicio nano-poroso multistrato

Tutti i campioni che abbiamo studiato sono dei multistrati di silicio poroso prodotti all'università di Trento dal gruppo di Pavesi [15]. Sebbene la realizzazione di questi sistemi non faccia parte di questo lavoro di tesi qui descriviamo a grandi linee il metodo di fabbricazione per comprenderne alcune proprietà fondamentali.

Il silicio cristallino in generale è inattaccabile dalla maggior parte degli acidi, quando però viene drogato (nel nostro caso con boro) le cariche libere ne rendono la superficie reattiva a sostanze come l'acido fluoridrico (HF). Quando l'acido inizia a scavare il silicio le cariche libere tendono a concentrarsi attorno al fondo della buca per effetto punta, lasciandone le pareti quasi completamente sprovviste e quindi poco sensibili all'azione dall'acido. Quello che si viene a formare sono quindi tanti fori profondi ma stretti (dell'ordine delle decine di nanometri) distribuiti in maniera casuale sulla superficie.

Le cariche (nel nostro caso le lacune) in un semiconduttore drogato non sono però esattamente libere di muoversi; per portarne sulla superficie un numero sufficiente a renderla chimicamente attiva è necessario applicare un potenziale fra il *wafer* di silicio e la soluzione acida. Aumentando questo potenziale si aumenta, in modo non lineare, la reattività della superficie e quindi la larghezza dei fori stessi.

È quindi possibile, modulando il potenziale (ovvero la corrente che scorre fra il silicio e l'anodo immerso nella soluzione acida) creare fori a sezione variabile. Nel nostro caso (silicio drogato p^+ e correnti dell'ordine dei mA) i fori hanno sezioni dell'ordine delle decine di nm ovvero dimensioni molto minori delle lunghezze d'onda con cui andremo a lavorare (che sono dell'ordine del μm) e quindi l'approssimazione di mezzo efficace

¹Una misura completa su un intervallo di lunghezze d'onda di 1 μm con una risoluzione di 1 nm (inclusa la misura dello spettro della lampada) occupa oltre un'ora e mezza. Aumentare significativamente la risoluzione delle misure vuol dire non avere più la certezza che l'apparato sia stabile per tutto il tempo necessario all'acquisizione.

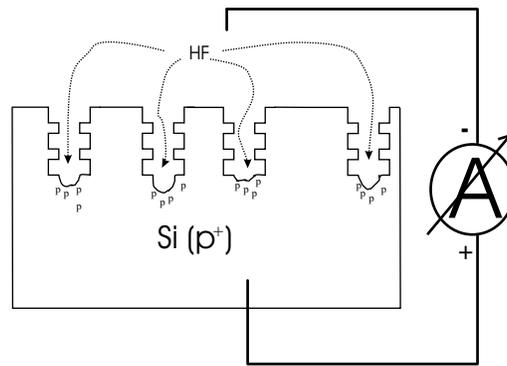


Figura 2.5: Modulando nel tempo la corrente è possibile variare la larghezza dei fori in funzione della profondità .

è perfettamente valida. Ogni strato a porosità ² costante può quindi essere descritto dall'indice di rifrazione (in generale complesso e funzione della frequenza).

Scavando nel silicio strati con porosità diversa si ottiene quindi un sistema composto da *fette* di indice di rifrazione diverso (controllabile in fase di produzione) ma con disomogeneità laterali contenute. Questo rende i multistrato di silicio poroso ottimi campioni per lo studio delle proprietà ottiche dei sistemi disordinati uno dimensionali. Infatti il disordine può essere facilmente introdotto scavando una successione casuale di strati a porosità diversa; un altro grosso vantaggio di questi sistemi è la possibilità di conoscere esattamente la particolare realizzazione del disordine in un dato campione dato che essa viene decisa durante la produzione. Come già detto per i nostri campioni è stata fatta la scelta di avere due soli tipi di strati, chiamati A e B, con indici di rifrazione diversi (rispettivamente 1,4 e 2,1) ma con lo stesso spessore ottico e di arrangerli casualmente in modo che ogni strato abbia una possibilità del 50% di essere di tipo A o di tipo B. L'effettiva successione per un campione da 350 strati è stata poi generata al calcolatore. Per campioni con un numero inferiore di strati questa successione è stata troncata al punto desiderato.

Un effetto che non si può trascurare nella fabbricazione e nello studio dei multistrato di silicio poroso è il gradiente di porosità . L'acido tende a scavare in profondità nel silicio perché il fondo dei fori è chimicamente molto più reattivo delle pareti, tuttavia quest'ultime non sono completamente passive e vi è sempre presente una piccola quantità

²La porosità è definita come la percentuale di volume occupato dall'aria nel campione. La porosità media può essere facilmente ottenuta tramite misure di massa.

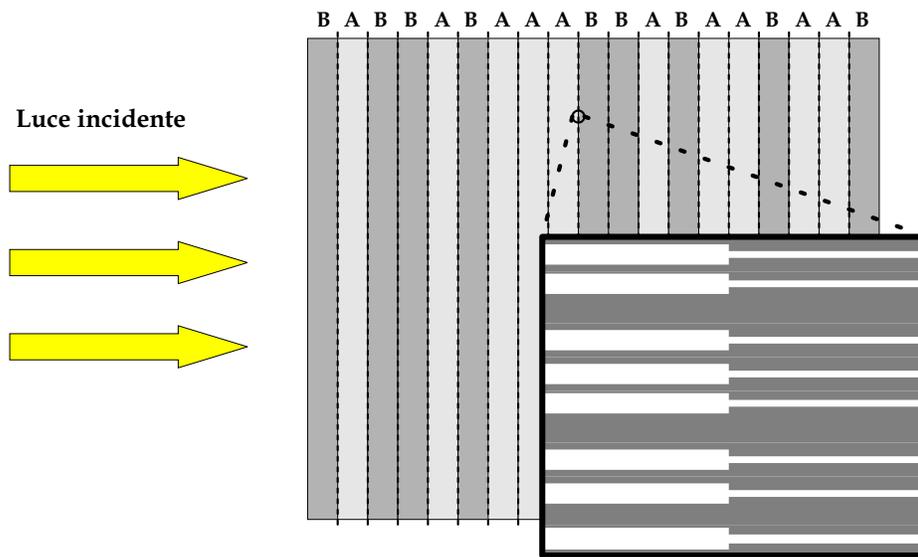


Figura 2.6: Sezione di un multistrato di silicio poroso. L'inserto mostra un ingrandimento dove è possibile distinguere i nano-pori che danno luogo all'indice di rifrazione dei due tipi di strato.

di lacune che rendono possibile la reazione. Mentre si scavano i pori degli strati più profondi del campione i più superficiali verranno allargati dalla lenta erosione dell'acido. In pratica il primo strato di tipo A che viene scavato avrà una porosità un po' più alta dell'ultimo; questo gradiente di porosità può essere stimato in circa l'8% ogni 100 strati.

2.2.1 Disomogeneità laterali dei campioni

Assumere una completa isotropia del sistema sul piano perpendicolare all'asse ottico è molto comodo per sviluppare una teoria dei sistemi multistrato ma campioni come i nostri, cresciuti tramite attacco acido di un *wafers* di silicio drogato, presentano delle disomogeneità che non sono mai completamente eliminabili in fase di produzione. Risulta quindi importante conoscere l'entità di tali disomogeneità per sapere quanto incideranno sulle nostre misure e sui nostri risultati.

Per darne una stima abbiamo fatto vari spettri su di un intervallo di lunghezze d'onda limitato variando, di volta in volta, il punto su cui focalizzavamo la luce della lampada. Quello che si vede è che, anche per piccoli spostamenti sulla superficie (comunque molto maggiori della lunghezza d'onda della luce incidente), lo spettro non è costante

ma si sposta e si deforma in maniera continua. Diventa quindi importante, per avere misure realmente confrontabili sullo stesso campione, essere sicuri di misurare sempre lo stesso punto.

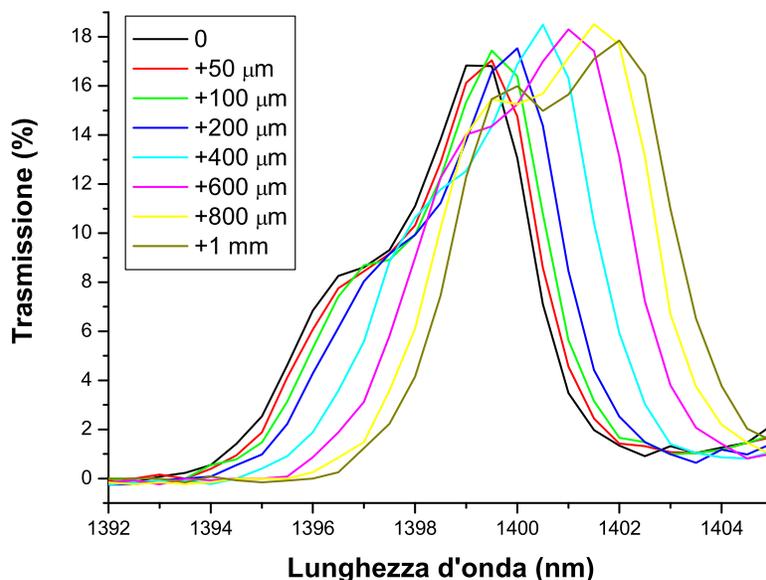


Figura 2.7: Dato un punto arbitrario sulla superficie del campione (che abbiamo indicato con la coordinata zero) abbiamo preso vari spettri a distanze note dal punto di origine. La risoluzione degli spettri è 0.5 nm.

2.2.2 Variazione dell'angolo di incidenza

Un'altro assunto che abbiamo fatto fino ad ora è che l'incidenza della luce sia normale alla superficie del campione. Da un punto di vista sperimentale questo è vero solo approssimativamente. Anche allineando con cura il campione perpendicolare al fascio rimane il problema che la superficie stessa del campione è macroscopicamente non piatta. Talvolta infatti il processo di essiccamento cui sono sottoposti i campioni quando vengono estratti dalla soluzione acida li lascia con una leggera bombatura irregolare evidenziata nella figura 2.8.

La generalizzazione delle matrici di trasferimento al caso di incidenza non normale è facile, basta infatti sostituire l'indice di rifrazione n con $n_i \cos \theta_i$ dove θ_i è l'angolo che

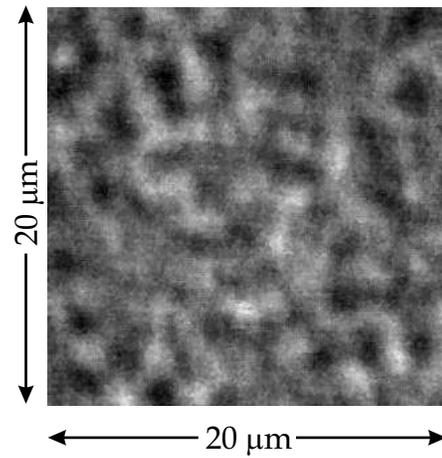


Figura 2.8: Immagine al microscopio confocale della superficie di un multistrato di silicio poroso. La risoluzione di 600 nm non permette di vedere i pori ma la rugosità della superficie è ben evidente.

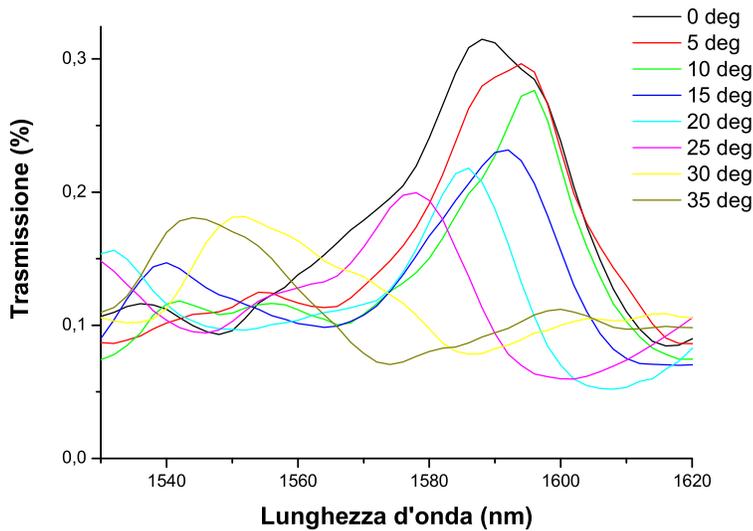


Figura 2.9: Misure di una stessa struttura nello spettro di trasmissione al variare dell'angolo di incidenza. Per angoli $\gtrsim 20^\circ$ lo spettro si sposta verso l'ultravioletto come previsto dalle simulazioni numeriche.

il fascio di luce forma con l'asse ottico nello strato con indice di rifrazione n_i (dato dalla legge di *Snell*). È però difficile seguire le conseguenze di un angolo di incidenza diverso da zero dopo la moltiplicazione di un gran numero di matrici di trasferimento tra loro. Gli approcci più semplici al problema sono le simulazioni numeriche o la misura diretta. Avendone la possibilità abbiamo preferito il secondo metodo, la figura 2.9 ne mostra un esempio.

Si può notare che lo spettro subisce mutazioni significative per angoli $\gtrsim 10^\circ$. Questo ci permette di essere confidenti che errori microscopici nel posizionamento del campione e le sue imperfezioni superficiali non inficeranno la validità e la riproducibilità delle nostre misure.

2.3 Confronto con la teoria.

Un metodo per vedere se siamo veramente in un regime localizzato e non diffusivo è quello di testare l'equazione 1.17 ovvero controllare se l'integrale della trasmissione decresce esponenzialmente all'aumentare del numero degli strati. Purtroppo anche i fenomeni di assorbimento e le perdite del sistema (la luce che viene diffusa fuori dall'asse ottico) danno lo stesso tipo di comportamento e dobbiamo riuscire a discriminare questi fenomeni l'uno dall'altro. Dall'ampia letteratura esistente (ad esempio [15]) prendiamo una stima del coefficiente di estinzione (che include sia l'assorbimento sia gli altri tipi di perdite) dei multistrato di silicio poroso pari a $\alpha_{ext} = 10^4 \text{ m}^{-1} \pm 5 \cdot 10^3 \text{ m}^{-1}$. Se

Tabella 2.2: Valori misurati e relative stime delle varianze per l'integrale della trasmissione dei vari campioni.

N	$\int T \, d\nu$ (u.a.)	σ
60	398	1,8
100	270	3
150	129	4,5
200	29,2	5,9
200	51,7	5,9
250	15,7	7,4
250	12	7,4
300	2,6	8,9
300	14	8,9
350	8,34	10,4

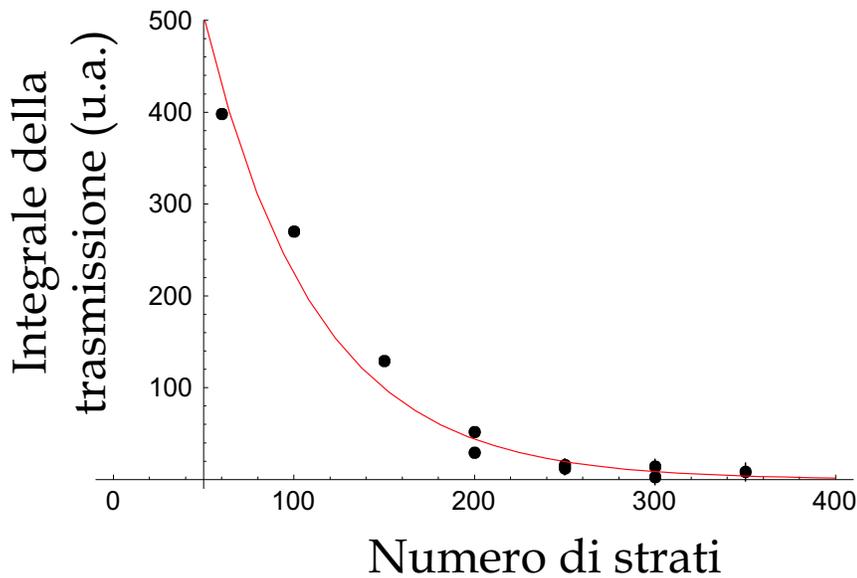


Figura 2.10: *Misure dell'integrale di T in funzione del numero di strati che compongono il campione con relative barre di errore (che risultano essere quasi sempre più piccole del simbolo usato per indicare la misura). Nel grafico è anche riportato (in rosso) il fit esponenziale.*

il decadimento esponenziale non può essere completamente giustificato dalle perdite allora abbiamo un'evidenza che il sistema si trovi in un regime localizzato.

L'errore sull'integrale della trasmissione non è dovuto tanto all'apparato di misura (il rumore su ogni spettro è trascurabile) ma al fatto che, fatte due misure sullo stesso campione in punti anche poco diversi, si ottengono valori differenti per via delle disomogeneità laterali. Per stimarlo abbiamo quindi preso un *set* di 10 misure su di uno stesso campione (composto da 250 strati) e ne abbiamo calcolato la varianza. Abbiamo poi supposto che gli errori dovuti alle disomogeneità laterali fossero lineari con N e così abbiamo ottenuto la deviazione *standard* per ciascuna delle nostre misure (i valori sono riportati nella tabella 2.2). Il grafico 2.10 riporta i valori dell'integrale sulla frequenza degli spettri in trasmissione in funzione dello spessore dei campioni (espresso dal numero di strati che li compongono).

Il coefficiente di decadimento esponenziale che otteniamo dal *fit* dei dati è $\alpha = 7,3 \cdot 10^4 \text{ m}^{-1} \pm 2,1 \cdot 10^4 \text{ m}^{-1}$ (l'errore è dovuto in buona parte all'incertezza con cui è noto $\langle d \rangle$).

Prendendo $\xi = \frac{1}{\alpha - \alpha_{ext}}$ si ottiene quindi

$$\xi = 15,9 \mu\text{m} \pm 6,6 \mu\text{m} \quad (2.1)$$

Questo risultato è qualitativamente in accordo con la stima che avevamo fatto nel Capitolo 1 di $\xi = 4,8 \mu m \pm 1,1 \mu m$; questa è una forte evidenza che la luce nei nostri sistemi multistrato di silicio nano-poroso si trovi in un regime localizzato e non diffusivo. La discrepanza fra la stima teorica e la misura è dovuta ad un gran numero di fattori: da un lato il modello teorico che abbiamo usato è molto idealizzato e non tiene conto nè delle disomogeneità del campione nè del gradiente di porosità, dall'altro abbiamo già detto che, mentre $\overline{\ln R}$ è una funzione rapidamente convergente, $\xi = \frac{L}{\overline{\ln R}}$ converge molto lentamente [13] [14] e quindi necessiterebbe di essere valutata su di un gran numero di campioni per essere sicuri che anche gli eventi più improbabili siano statisticamente ben rappresentati.

Capitolo 3

Misure risolte in tempo

Nei primi due capitoli ci siamo concentrati principalmente sulle proprietà medie dei campioni come la resistenza e lunghezza di localizzazione tralasciando le caratteristiche specifiche dei singoli stati. Queste sono scarsamente predicibili dalla teoria perché variazioni, anche modeste, nella realizzazione del disordine possono portare ad una distribuzione del campo all'interno dei campioni molto diversa.

Anche trascurando la possibilità di predire esattamente la comparsa di questi stati, la descrizione teorica del loro comportamento pone alcuni problemi: in particolare le proprietà di uno stato localizzato in una certa zona del campione non dipenderanno solo (o principalmente) dalla struttura del campione stesso nella regione circostante come ci si potrebbe aspettare da strutture ordinate. Al contrario saranno d'importanza fondamentale anche tutte le zone più lontane e le riflessioni multiple che vi avvengono. Quello che si può fare è misurare questi stati e le loro proprietà e farne una “catalogazione”, cioè suddividerli qualitativamente in categorie a seconda del loro comportamento. A questo scopo lo studio degli spettri di trasmissione non risulta essere uno strumento ottimale; le caratteristiche del disordine e le proprietà dei singoli stati si riflettono in maniera molto sottile nella forma dei picchi mentre da un punto di vista sperimentale è molto difficile riuscire distinguere queste piccole differenze dato che, anche con misure ad alta risoluzione, di un picco largo pochi nanometri non si potranno misurare più di dieci o venti punti.

Da questo punto di vista le misure risolte in tempo sono uno strumento decisamente più potente e versatile poiché l'evoluzione temporale magnifica molto queste piccole

variazioni. Eccitando il sistema con un impulso corto ad una certa frequenza si può misurare come quest'impulso verrà distorto dalle risonanze interne e quindi ottenere importanti informazioni sul modo in cui la luce si è propagata all'interno del campione [19].

3.1 Calcoli numerici e previsioni teoriche

Vista la complessità intrinseca dei sistemi disordinati è necessario fare delle semplificazioni e cercare dei paralleli con delle situazioni già ben conosciute e semplici da descrivere come le strutture ordinate. Per i campioni multistrato la scelta più naturale è quella di cercare di descriverne le proprietà in base a quello che sappiamo accadere negli specchi interferenziali (specchi di Bragg) e nelle microcavità (singole o accoppiate); nel farlo però non dobbiamo mai commettere l'errore di confondere il modello con il sistema reale, queste strutture non sono realmente presenti nei sistemi disordinati e dovremo sempre stare attenti a non estrapolare più di quanto sia lecito.

Il parallelo forse più interessante fra il caso ordinato e quello disordinato è probabilmente quello fra le microcavità e gli stati localizzati: in entrambi i casi gli effetti di interferenza intrappolano la luce in una regione più o meno limitata del campione e danno luogo ad un picco di trasmissione (più o meno stretto a seconda della qualità delle cavità stessa) che è atteso essere lorentziano. Di conseguenza ci aspettiamo che eccitando uno stato localizzato si abbia come risposta in tempo un decadimento esponenziale; in particolare ci aspettiamo che uno stato dove la localizzazione è molto efficiente dia luogo ad un decadimento con una costante di tempo lunga ed un ritardo pronunciato mentre uno stato poco localizzato darà luogo ad un decadimento molto rapido e senza un ritardo apprezzabile. Al limite si potranno avere stati che lasciano passare l'impulso con cui li eccitiamo quasi invariati (corrispondenti a picchi di trasmissione molto larghi).

Una situazione più complicata è quella dove siano presenti diversi picchi a frequenze abbastanza simili da essere eccitati contemporaneamente (analogo al caso delle microcavità accoppiate), in questo caso al decadimento esponenziale si sovrappongono i battimenti fra le varie frequenze. Nel caso in cui i picchi in gioco siano due, l'interpretazione è semplice in quanto l'intervallo di tempo fra due massimi successivi è dato

dall'inverso della separazione in frequenza dei picchi. D'altra parte la sovrapposizione di molte risonanze può dare origine ad effetti di interferenza molto più complicati da cui non è sempre facile risalire alla struttura interna del campione.

3.2 L'apparato di misura

Per la misura della risposta temporale dei campioni disordinati abbiamo usato un sistema di *optical gating* (i cui principi di base sono descritti nell'Appendice C) rappresentato in figura 3.1 (questo sistema di misura è stato progettato e realizzato da Riccardo Sapienza e Paola Costantino nell'ambito della ricerca sulle oscillazioni di Bloch ottiche [12]). Un laser in continua ad argon [20] (in modalità multifrequenza e con una potenza di 12,4 W) viene usato per eccitare un laser a titanio-zaffiro [21] che genera impulsi con una durata di 130 fs ad una frequenza di ripetizione di 82 MHz con una lunghezza d'onda centrale di 810 nm (con potenza media di 2 W). Questo a sua volta viene usato come pompa per un oscillatore parametrico [22] che procede ad effettuare una generazione di frequenza differenza; la frequenza centrale degli impulsi può essere controllata tramite l'accordo di fase del cristallo non lineare in un intervallo fra 1,46 μm e 1,57 μm con una potenza media di 100 mW. Il fascio viene poi fatto passare in un telescopio (descritto in figura 3.1) per ottenere sul campione un fuoco di 20 μm ; il segnale trasmesso viene poi ricollimato e mandato sul cristallo non lineare di beta borato di bario (BBO). Come segnale di *gate* viene usato il residuo di pompa (450 mW) che esce dal retro dell'oscillatore parametrico. La frequenza somma generata viene quindi isolata tramite un prisma ed una serie di filtri, sia spaziali che in frequenza e misurata tramite un fotodiodo (UDT-455 [23], sensibilità = 0,65 $\frac{\text{A}}{\text{W}}$, capacità = 15 pF, corrente di buio = 0,25 nA, NEP¹ = 1,4 $10^{-14} \frac{\text{W}}{\sqrt{\text{Hz}}}$).

Il ritardo τ viene regolato tramite una slitta motorizzata (controllata elettronicamente) che muove un retroreflettore cavo² con passi di 2 μm , equivalenti a $\Delta\tau = 13 \text{ fs}$.

Deviando il segnale subito prima del cristallo non lineare, tramite uno specchio su montaggio cinematico, abbiamo anche la possibilità di mandarlo al monocromatore e

¹*Noise Equivalent Power*: definito come la potenza della radiazione che deve incidere sul rivelatore per dare un segnale pari al rumore intrinseco dello strumento.

²Un retroreflettore cavo consiste in tre specchi piani mutuamente ortogonali [24].

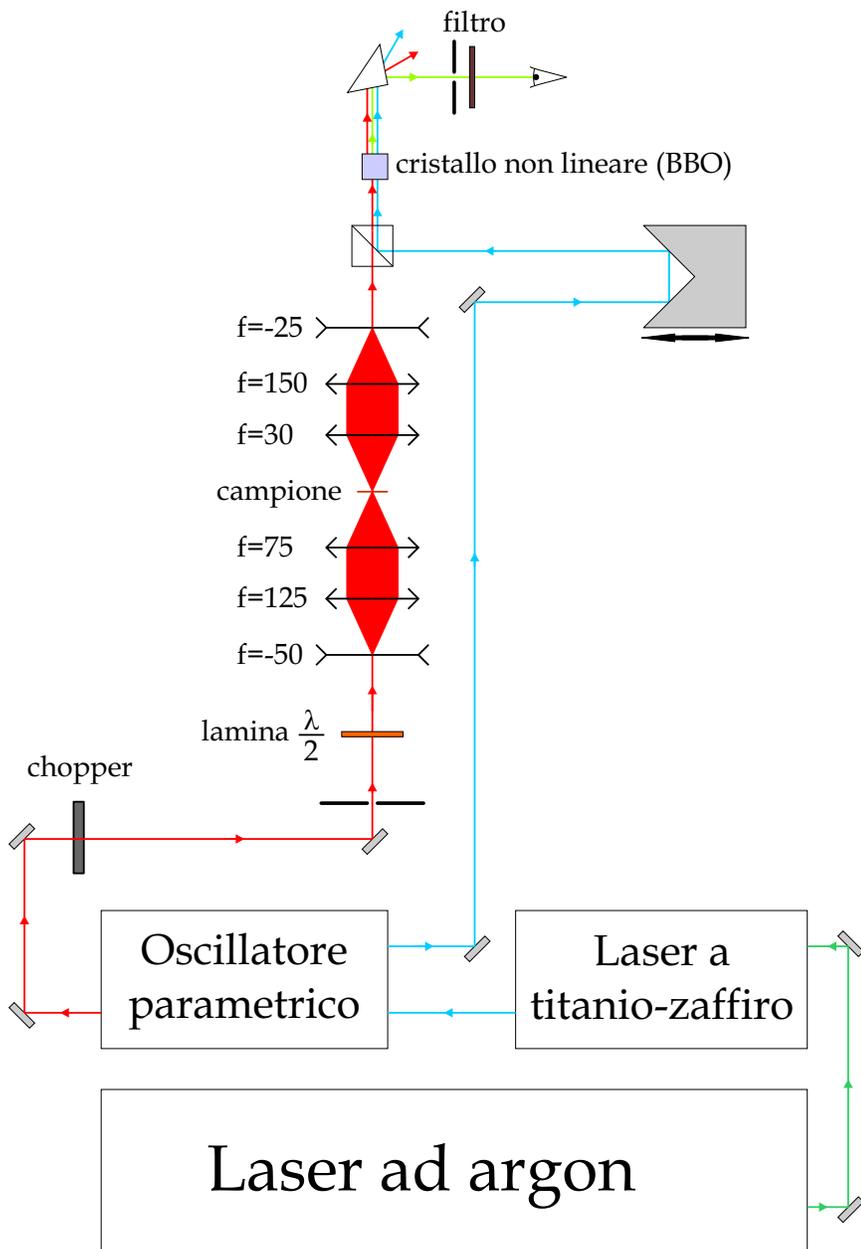


Figura 3.1: Diagramma del sistema per le misure risolte in tempo. Le lunghezze focali delle lenti sono espresse in millimetri.

quindi di misurarne (con lo stesso apparato descritto nel capitolo 2) lo spettro senza cambiare in alcun modo il punto del campione che stiamo sondando. In questo modo possiamo compiere misure sia in tempo che in frequenza perfettamente confrontabili fra loro, nonostante le disomogeneità laterali dei nostri campioni.

Chiamando I_g il segnale di *gate* proveniente dal titanio-zaffiro e I_s il segnale uscente dal campione, l'equazione C.3 ci dice che il segnale misurato sarà dato da

$$I(\tau) \propto \int_{-\infty}^{+\infty} I_s(t) I_g(\tau + t) dt . \quad (3.1)$$

I_s può essere riscritto come il prodotto di convoluzione fra l'impulso I_o proveniente dall'oscillatore parametrico e la funzione di risposta R del campione ovvero

$$I(\tau) \propto \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} R(\theta) I_o(t - \theta) I_g(\tau + t) dt d\theta \quad (3.2)$$

che, facendo il cambio di variabile $t = k + \theta$, diventa

$$I(\tau) \propto \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} R(\theta) I_o(k) I_g(k + (\tau + \theta)) dk d\theta . \quad (3.3)$$

Notiamo che, se nessun campione è inserito nel sistema di misura (il che equivale matematicamente ad avere la funzione di risposta pari ad una delta di Dirac), quello che si misura è $C(\tau + \theta) = \int_{-\infty}^{+\infty} I_o(k) I_g(k + (\tau + \theta)) dk$, in altre parole il prodotto di cross-correlazione fra I_o e I_g . Notiamo anche che, essendo C il prodotto di correlazione fra due funzioni simmetriche, sarà anch'esso simmetrico nel senso che $C(x) = C(-x)$, e quindi potremo riscrivere l'equazione 3.3 come

$$I(\tau) \propto \int_{-\infty}^{+\infty} R(\theta) C(\tau - \theta) d\theta . \quad (3.4)$$

3.2.1 Precisione delle misure ed errori

La precisione con cui possiamo misurare $I(\tau)$ è data dalla risoluzione $\Delta\tau = 13 fs$ e dal rumore (stimabile come il 2% sul massimo del segnale), tuttavia la grandezza cui siamo

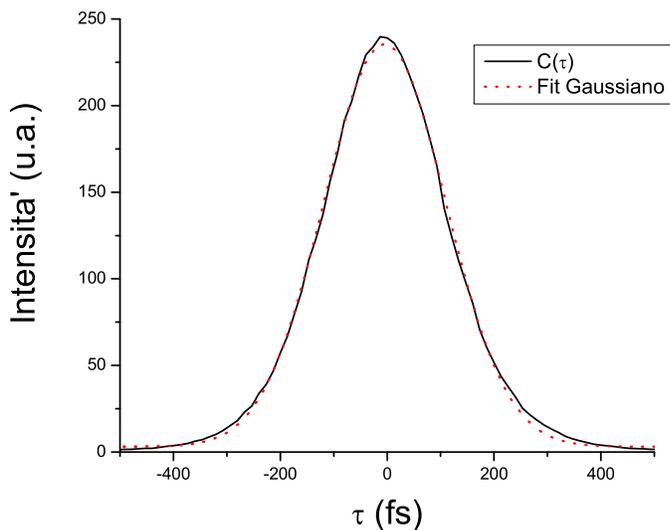


Figura 3.2: Misura della cross-correlazione fra I_o e I_g . La misura di C permette di stabilire lo zero della scala dei tempi per le successive misure. Da un fit gaussiano si ottiene una larghezza di 228 ± 1 fs.

interessati non è direttamente $I(\tau)$ ma la funzione di risposta del campione R . La normale propagazione degli errori risulta estremamente complicata quando cerchiamo di applicarla ad un prodotto di convoluzione o alle trasformate di Fourier e pone problemi teorici non banali che esulano dagli scopi di questa tesi. Un metodo che può essere applicato per aggirare il problema è quello di fare delle ipotesi sulla forma funzionale di R ed estrapolare tramite un procedimento di *fit* i parametri che vogliamo misurare; l'errore può quindi essere stimato come lo scarto quadratico medio fra il miglior *fit* ed i dati sperimentali.

Nel nostro caso siamo interessati solo ad una descrizione qualitativa di R e non a ricavarne nel dettaglio i parametri; ci limiteremo quindi all'osservazione che il prodotto di convoluzione con C influenza diversamente il risultato a seconda di quale sia l'informazione che stiamo cercando di estrarre dalla misura di I . Ad esempio il prodotto di convoluzione di R con una funzione monomodale (come C) non ne cambia la posizione dei massimi e dei minimi anche se ne può cambiare notevolmente forma ed altezza. Potremo quindi studiare delle proprietà generali dei segnali (come il baricentro

dell'impulso o la sua larghezza) e di ordinarle gerarchicamente rispetto a queste³.

3.3 Risultati sperimentali

Abbiamo compiuto misure risolte in tempo su 7 campioni con spessore compreso fra i 150 ed i 350 strati (ovvero fra i $33,3 \mu m$ ed i $77,7 \mu m$) variando a passi di 5 nm la lunghezza d'onda centrale dell'impulso di eccitazione λ_c in tutto l'intervallo utile dove era possibile regolare l'oscillatore parametrico (ovvero fra $1,46 \mu m$ e $1,57 \mu m$). Abbiamo invece campionato gli spettri di trasmissione solo ogni 10 nm di variazione di λ_c perché ci aspettiamo che questi cambino con maggior continuità rispetto al profilo temporale. Abbiamo anche tentato misure su campioni di spessore minore ma abbiamo trovato che i picchi di trasmissione erano più larghi dell'impulso di eccitazione (proveniente dall'oscillatore parametrico) che quindi passava praticamente indisturbato.

Anche nei campioni più spessi il numero di picchi di trasmissione presenti è elevato (anche se molti di questi sono piuttosto bassi) e quindi non è facile riuscire ad eccitare un solo picco e studiarne il comportamento. Perché questo accada deve presentarsi la situazione dove in un intervallo di almeno 40 nm c'è un solo picco isolato, in caso contrario saranno visibili anche gli effetti di interferenza fra le varie frequenze.

In figura 3.4 viene mostrato uno dei casi dove è stato possibile compiere una tale misura. Per analizzarla possiamo definire il baricentro di un impulso come il tempo t_b per cui $\int_{-\infty}^{t_b} I(t) dt = \frac{1}{2} \int_{-\infty}^{+\infty} I(t) dt$ ed il ritardo di un segnale come la differenza fra il suo baricentro e quello della cross-correlazione $C(t)$ opportunamente corretta per il tempo che sarebbe necessario ad attraversare uno spessore uguale a quello del campione sotto esame di un materiale uniforme con indice di rifrazione pari all'indice di rifrazione medio del campione stesso.

Un picco di trasmissione alto e stretto come questo è un'indicazione che abbiamo trovato uno stato fortemente localizzato all'interno del sistema; la misura risolta in tempo conferma appieno questa nostra supposizione mostrando un decadimento esponenziale con una costante di tempo molto lunga (rispetto a quella di $C(t)$) ed un ritardo pronunciato.

³Per tutte le proprietà B che considereremo vale che se $B(R_1) < B(R_2)$ allora $B(R_1 * C) < B(R_2 * C)$ anche se $B(R_{1,2}) \neq B(R_{1,2} * C)$.

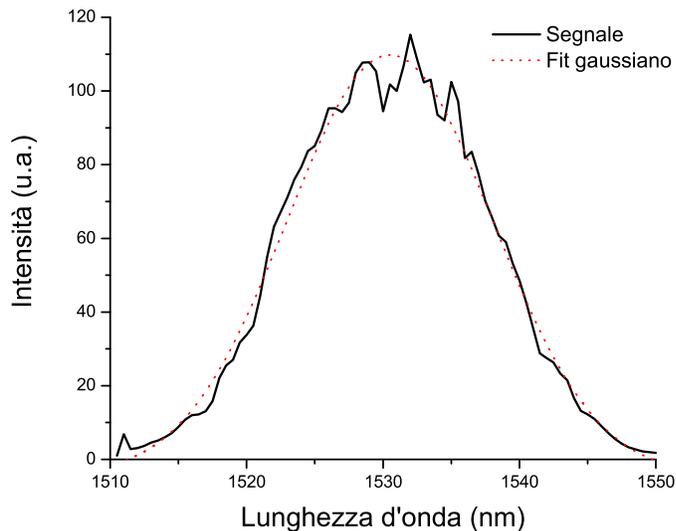


Figura 3.3: Esempio di una misura dello spettro dell'impulso di eccitazione proveniente dall'oscillatore parametrico. Come si vede l'impulso è praticamente nullo al di fuori di un raggio di 20 nm da λ_c (qui scelta uguale a 1530 nm). Quest'informazione ci è utile perché, quando andremo a fare le misure dello spettro trasmesso dal campione, sapremo qual è l'intervallo di lunghezza d'onda da misurare ed avremo la certezza che al di fuori di quell'intervallo non possa esserci alcun segnale.

La figura 3.5 mostra una situazione speculare: in questo caso la trasmissione del campione è molto bassa e quasi uniforme, anche se è possibile riconoscere una qualche struttura nello spettro nella forma di piccole oscillazioni sopra lo zero i cui effetti sono visibili nei deboli battimenti presenti nell'evoluzione temporale del segnale (nella scala lineare questi sono impercettibili e quindi risulta evidente l'utilità di osservare sempre la misura anche in scala logaritmica). Questa è la struttura tipica che ci aspettiamo per uno stato debolmente localizzato e difatti, nella misura risolta in tempo, possiamo osservare che il decadimento è estremamente veloce (la costante di tempo è dello stesso ordine di quella di $C(t)$) ed il ritardo quasi inesistente.

Il confronto fra questi due esempi può offrire una solida base per l'interpretazione e la classificazione di tutte le altre misure che, nella maggior parte dei casi, possono essere facilmente ricondotte all'interazione fra due o più strutture di questo tipo. Per esempio un caso relativamente semplice è quello dove si presentano, eccitati contemporaneamente, due picchi di trasmissione di altezza e larghezza comparabili. Assumendo per comodità che questi picchi siano delle delta di Dirac rispettivamente poste a fre-

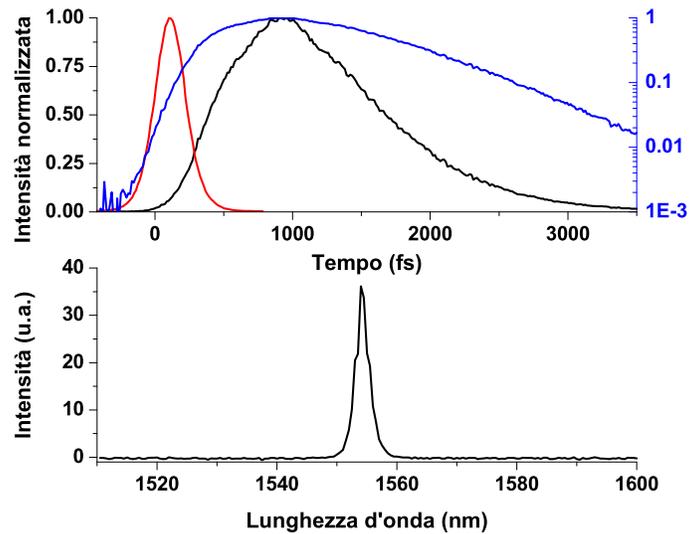


Figura 3.4: *Misura di spettro e risolta in tempo della risposta di un picco di trasmissione stretto ed isolato in un campione da 200 strati. Sia in questo che nei prossimi grafici in rosso viene riportata la cross-correlazione (già mostrata in fig. 3.2) corretta per il ritardo che sarebbe introdotto dall'attraversare un uguale spessore di un materiale uniforme con indice di rifrazione pari all'indice di rifrazione medio dei nostri sistemi di silicio poroso. In blu viene invece riportata la misura stessa in scala logaritmica.*

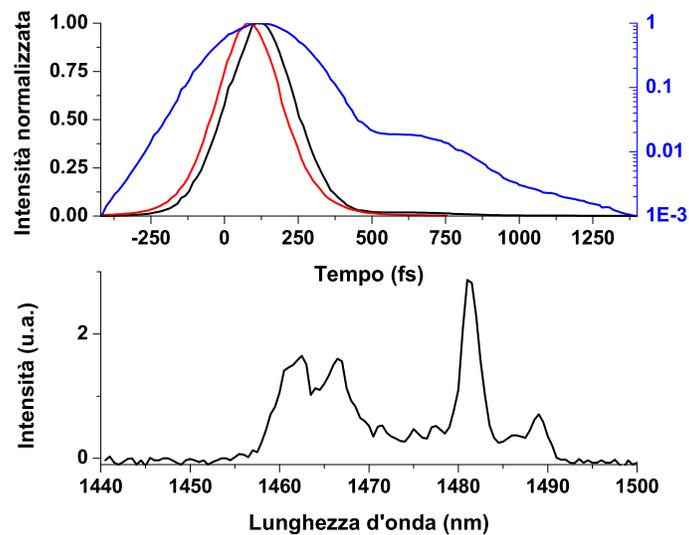


Figura 3.5: *Misura di spettro e risolta in tempo della risposta di una zona a bassa trasmissione in un campione da 150 strati.*

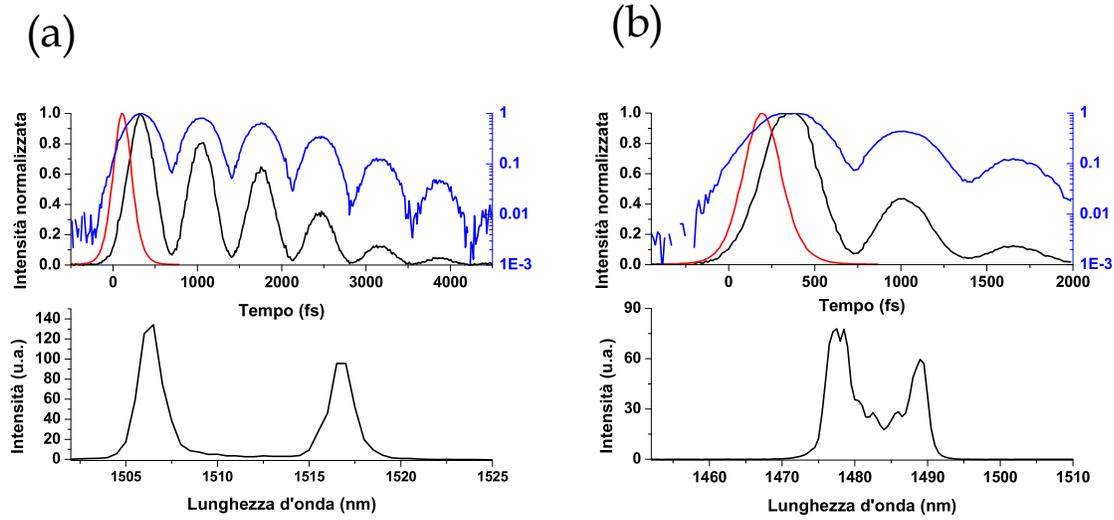


Figura 3.6: *Misure di spettro e risolte in tempo di due casi dove due picchi sono eccitati contemporaneamente. Il grafico (a) si riferisce ad un campione da 150 strati, mentre il grafico (b) si riferisce ad un campione da 350 strati.*

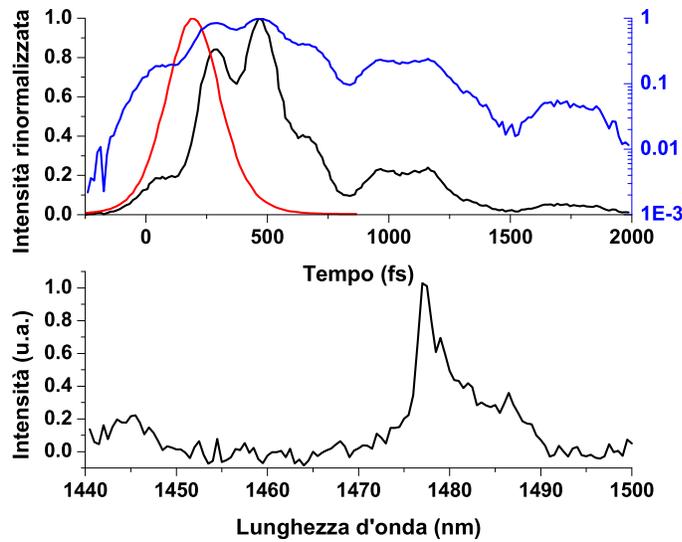


Figura 3.7: *Misure di spettro e risolte in tempo di una struttura complessa e di difficile interpretazione su di un campione da 350 strati.*

quenza ω_1 e ω_2 in uscita dal campione il segnale avrà la forma $A_1 e^{i\omega_1 t} + A_2 e^{i\omega_2 t}$ il cui modulo quadro può essere scritto nella forma $A_1^2 + A_2^2 + 2A_1 A_2 \cos((\omega_1 - \omega_2) t)$ ovvero l'intensità misurata oscillerà con un periodo T inversamente proporzionale alla separa-

zione in frequenza dei picchi. La figura 3.6 mostra due esempi di misure che presentano queste caratteristiche in maniera abbastanza pulita. In entrambi i casi la separazione fra i picchi di trasmissione e la distanza fra due massimi successivi della misura risolta in tempo sono perfettamente compatibili con la relazione $T = \frac{1}{\omega_1 - \omega_2}$.

In realtà misure così pulite e di facile interpretazione sono relativamente rare da ottenere. Come già detto i campioni disordinati sono particolarmente ricchi di strutture e picchi di trasmissione spesso tanto ravvicinati tra loro da confondersi l'uno nell'altro. Questo dà origine a complicati fenomeni di interferenza in prima istanza difficili da interpretare in maniera quantitativa (un esempio è dato in figura 3.7).

È bene però notare che a priori non è possibile prevedere quale sarà il risultato di una certa misura (ad esempio su di un certo campione ad una certa λ_c) per andare a cercare proprio il caso che stavamo cercando; una delle proprietà caratteristiche dei sistemi disordinati è proprio quella di presentare statisticamente tutta una serie di comportamenti e, per sondarli tutti, l'unico metodo è di compiere misure su di un *set* di campioni e su di un intervallo di frequenza molto grandi (ovvero su di un insieme statistico più ampio possibile) nella speranza di ottenere informazioni anche sui comportamenti statisticamente più improbabili.

3.4 Stati delocalizzati nei sistemi disordinati 1-D

La dimostrazione matematica che in ogni campione disordinato uno dimensionale la resistenza media diverga esponenzialmente con lo spessore (proprietà che abbiamo analizzato in dettaglio nel Capitolo 1) ha portato al luogo comune che tutte le frequenze in questi sistemi debbano corrispondere a stati localizzati. In realtà, dato che la dimostrazione concerne solo le proprietà statistiche medie dei campioni, quest'affermazione è falsa in alcuni casi notevoli.

Un primo caso può essere schematizzato pensando di introdurre in un mezzo altresì uniforme ed omogeneo uno strato di un materiale di indice di rifrazione differente. Esisterà un insieme numerabile di frequenze (corrispondenti a lunghezze d'onda che siano frazioni intere dello spessore dello strato) esattamente risonanti per cui questo strato sarà completamente trasparente. Se pensiamo poi di introdurre in maniera casuale nel

mezzo un numero arbitrario di strati identici a questo il risultato non cambierà, per questo insieme di frequenze il mezzo resterà trasparente indipendentemente da quanto disordine riusciremo ad introdurre [4]. Abbiamo già incontrato questo caso nel primo capitolo quando, dalle equazioni 1.15 e 1.16, avevamo dedotto che per alcune frequenze la lunghezza di localizzazione sarebbe stata infinita e quindi, per quelle frequenze, il sistema non sarebbe stato localizzato.

Un altro caso, decisamente più interessante, è stato predetto teoricamente da J.B. Pendry [14]; nei sistemi disordinati compaiono un gran numero di picchi di trasmissione e non è improbabile che alcuni di essi possano essere tanto vicini da confondersi l'uno nell'altro. Prendiamo il caso limite in cui due di questi picchi siano sovrapposti, ci troviamo nella situazione in cui, all'interno del campione, si trovano due risonanze a frequenze molto simili ma spazialmente separate (nel senso che la luce è localizzata a due profondità diverse nel campione). Ovviamente questo non è più catalogabile come uno stato localizzato ma sarà piuttosto uno stato diffuso su di una certa regione del campione. Iterando il ragionamento possiamo pensare a particolari realizzazioni del disordine che ammettano un numero arbitrario n di queste risonanze a frequenze abbastanza simili ed abbastanza ravvicinate spazialmente da permettere che la luce faccia effetto *tunnel* fra di esse ottenendo così stati fortemente delocalizzati (anche se sempre più improbabili al crescere di n) che chiameremo stati concatenati⁴. Il comportamento atteso, sia in tempo che in frequenza, da parte di questi stati è peculiare: abbiamo finora associato i picchi ad una singola risonanza all'interno del campione; in questo caso la trasmissione sarà elevata (anche prossima al 100%) ma solo per la frequenza esattamente risonante che quindi ha una più alta probabilità di poter raggiungere lo stato localizzato per effetto *tunnel* ed allo stesso modo riemergere dall'altro lato del campione, nel caso di uno stato concatenato la trasmissione sarà sempre alta ma il picco di trasmissione associato sarà allargato dalla presenza di molte risonanze dato che queste non sono tutte alla stessa frequenza. È bene notare che proprio per questa "larghezza" dei picchi in trasmissione ad essi associati gli stati concatenati giocano un ruolo molto importante nella determinazione di \bar{R} nonostante la loro piccola probabilità statistica di essere presenti nelle singole realizzazioni del disordine. Questa è una delle ragioni principali per cui \bar{R} è una funzione che converge lentamente.

Anche se difficilmente misurabile, i picchi di trasmissione associati agli stati localizzati

⁴In originale *necklace-states*.

e quelli associati agli stati concatenati presentano una differenza fondamentale nella forma: difatti uno stato localizzato darà luogo ad un picco essenzialmente Laurentziano mentre quello di uno stato concatenato sarà la sovrapposizione di un certo numero di picchi Laurentziani che presentano tra di loro piccole differenze casuali in altezza, larghezza e lunghezza d'onda centrale che, per il teorema del limite centrale, converge rapidamente ad una Gaussiana. Questo ha delle conseguenze notevoli nella risposta in tempo del campione, difatti il prodotto fra il profilo della trasmissione (Gaussiano) con l'impulso di eccitazione generato dall'oscillatore parametrico (Gaussiano) è esso stesso una Gaussiana e l'evoluzione temporale ad essa associata (ovvero la sua anti-trasformata di Fourier) sarà ancora una volta Gaussiana, ben diversa dai decadimenti esponenziali che abbiamo visto nei paragrafi precedenti.

Un altro metodo per arrivare ad una predizione analoga è notare che i tempi di decadimento da una risonanza dipendono da quanto è lungo il tragitto che la luce deve compiere per effetto *tunnel* per uscire dal campione. In uno stato concatenato le risonanze sono distribuite su tutto lo spessore del campione e quindi il tempo di decadimento sarà dato solo dallo spessore residuo fra l'ultima risonanza e la superficie ovvero possiamo aspettarci tempi di decadimento molto brevi. In più possiamo pensare che la luce impieghi molto più tempo ad attraversare n risonanze piuttosto che una sola e quindi predire che la risposta in tempo associata agli stati concatenati presenterà un forte ritardo.

Abbiamo già visto che un forte ritardo associato ad un tempo di decadimento breve non è compatibile con la trasmissione dominata da una singola risonanza (abbiamo già analizzato il caso stati fortemente localizzati, con forte ritardo e lunghi tempi di decadimento, e debolmente localizzati, con ritardo quasi inesistente e tempi di decadimenti brevi) e quindi useremo la comparsa di queste due caratteristiche contemporaneamente come marcatori per gli stati concatenati.

3.4.1 Modelli e calcoli numerici per gli stati concatenati

Per verificare le nostre previsioni, fino ad ora molto qualitative, sul comportamento degli stati concatenati possiamo studiarne numericamente una versione addomesticata e semplificata nella forma di sistemi ordinati. Abbiamo già fatto più volte il parallelo fra il comportamento di una risonanza in un sistema disordinato e quello di una microcavità;

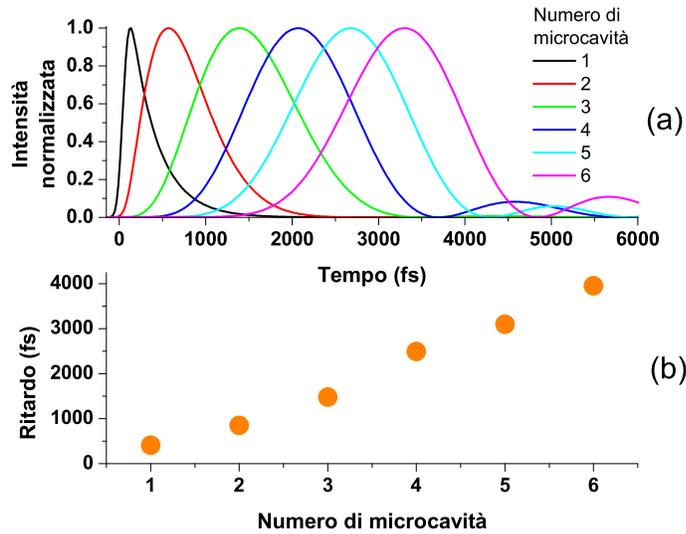


Figura 3.8: Simulazioni della risposta in tempo per campioni contenenti da una a sei microcavità identiche separate da specchi di Bragg. Per ogni struttura viene riportato nel grafico (a) il profilo dell'evoluzione temporale e nel grafico (b) il ritardo.

possiamo quindi pensare che se mettiamo a profondità diverse in un campione ordinato diverse microcavità risonanti a frequenze molto simili e separate da specchi di Bragg potremo ottenere una risposta analoga a quella di uno stato concatenato. Ovviamente occorre procedere con una certa cura: innanzitutto gli specchi di Bragg che separano le microcavità non potranno essere troppo spessi o la trasmissione del sistema sarà troppo bassa, d'altra parte se le microcavità sono troppo vicine ed il *tunneling* fra di loro troppo efficiente si avrà uno sdoppiamento dei livelli che potrebbe vanificare i nostri sforzi (dato che vogliamo che i picchi di trasmissione siano sovrapposti).

In figura 3.8 sono mostrate le simulazioni ottenute per sistemi contenenti da una a sei microcavità dove si può notare che all'aumentare del numero di microcavità il ritardo tende ad aumentare linearmente ed il profilo temporale tende a diventare sempre meno esponenziale. I deboli battimenti che si possono osservare nell'evoluzione temporale delle strutture con un maggior numero di microcavità sono dovute alla separazione dei livelli che si ottiene inevitabilmente in questi sistemi.

3.4.2 Stima della probabilità di trovare uno stato concatenato

Fino ad ora ci siamo limitati a dire che gli stati concatenati sono statisticamente molto improbabili e che la probabilità che in una particolare realizzazione del disordine se ne produca uno è molto bassa; questo però non vuole assolutamente dire che, per campioni di spessore finito, non ci sia alcuna speranza di trovarne uno. Siamo quindi interessati a dare una stima della probabilità che, preso un picco nello spettri di trasmissione, questo sia effettivamente dovuto ad uno stato concatenato invece che ad una risonanza singola.

Se chiamiamo B l'intervallo di vettori \vec{K} che riusciamo a misurare e M il numero dei picchi di trasmissione presenti in quest'intervallo possiamo ragionevolmente supporre che il rapporto $\frac{M}{B}$ sia, in media, una costante dipendente solo dallo spessore del campione e dal grado di disordine introdotto ma non da B [14]. Una stima della probabilità che n picchi di larghezza ΔK_n si sovrappongano spettralmente, dando quindi origine ad uno stato concatenato sarà data da

$$P_n \cong \left(\Delta K_n \frac{M}{B} \right)^{n-1} . \quad (3.5)$$

Il problema di questa formula è che ΔK_n non è una grandezza direttamente misurabile per ogni n . Sarebbe infatti necessario sapere a priori quante risonanze danno origine ad un dato picco e misurarne accuratamente la larghezza ma questa informazione non è disponibile; l'unico caso in cui possiamo ragionevolmente pensare di fare questa misura è per $n = 1$, difatti la maggior parte dei picchi, soprattutto quelli molto stretti, saranno formati da un'unica risonanza. Dobbiamo quindi trovare un modo di esprimere ΔK_n in funzione di ΔK_1 .

Partiamo da un modello semplice di trasporto a cavità singola, ovvero pensiamo che il picco di trasmissione sia dovuto ad un'unica risonanza posta approssimativamente al centro del sistema [14]. Per via della localizzazione la probabilità che la luce riesca ad attraversare uno strato di spessore l (con $l \gg \xi$) decresce esponenzialmente con l , ovvero $T = e^{-\frac{l}{2\xi}}$ e quindi

$$t = e^{-\frac{l}{2\xi}} . \quad (3.6)$$

In assenza di assorbimento vale la relazione $r^2 = 1 - t^2$ e quindi

$$r = \sqrt{1 - t^2} = \sqrt{1 - e^{-\frac{l}{\xi}}} \cong 1 - \frac{e^{-\frac{l}{\xi}}}{2}, \quad (3.7)$$

dove l'ultimo passaggio è lecito perché, essendo $l \gg \xi$ possiamo sviluppare la radice per $t^2 \ll 1$.

Con queste due grandezze possiamo definire la matrice di trasferimento

$$X_{strato} = \begin{pmatrix} \frac{1}{t^*} & \frac{r}{t} \\ \frac{r^*}{t^*} & \frac{1}{t} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} e^{\frac{l}{2\xi}} & \frac{1 - e^{-\frac{l}{\xi}}}{e^{-\frac{l}{2\xi}}} \\ \frac{1 - e^{-\frac{l}{\xi}}}{e^{-\frac{l}{2\xi}}} & e^{\frac{l}{2\xi}} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} e^{\frac{l}{2\xi}} & 2 \sinh\left(\frac{l}{2\xi}\right) \\ 2 \sinh\left(\frac{l}{2\xi}\right) & e^{\frac{l}{2\xi}} \end{pmatrix}. \quad (3.8)$$

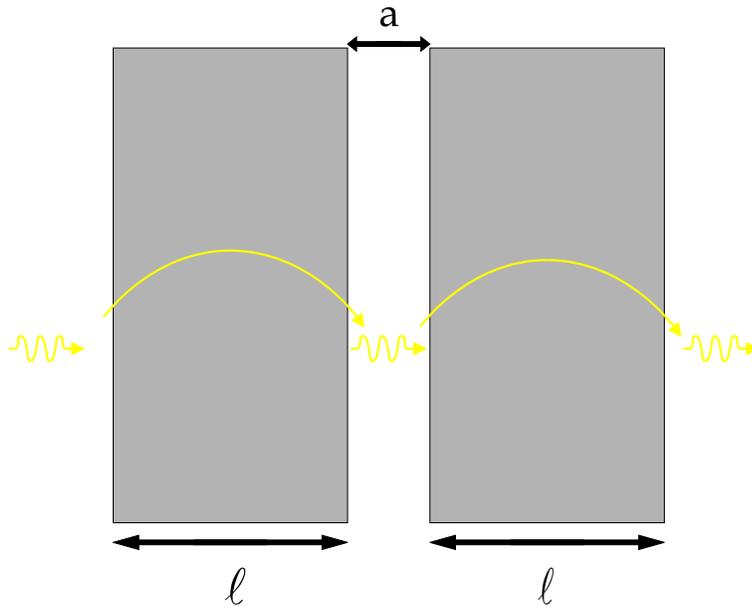


Figura 3.9: *Modello di trasporto a cavità singola. Siccome siamo in un regime localizzato la probabilità che la luce attraversi lo spessore dello strato decresce esponenzialmente con l (analogo all'effetto tunnel).*

All'interno della cavità la luce subirà semplicemente uno sfasamento e quindi

$$X_{cavità} = \begin{pmatrix} e^{-iKa} & 0 \\ 0 & e^{iKa} \end{pmatrix}; \quad (3.9)$$

da queste possiamo scrivere la matrice di trasferimento totale del sistema che avrà la forma

$$\begin{aligned} X_{totale} &= \begin{pmatrix} \frac{1}{t_{totale}^*} & \frac{r_{totale}}{t_{totale}} \\ \frac{r_{totale}^*}{t_{totale}^*} & \frac{1}{t_{totale}} \end{pmatrix} = X_{strato} X_{cavità} X_{strato} = \\ &= \begin{pmatrix} e^{-iKa + \frac{l}{\xi}} + 2e^{iKa} \left(\cosh\left(\frac{l}{\xi} - 1\right) \right) & \frac{(1+e^{2iKa})\left(e^{\frac{l}{\xi}} - 1\right)}{e^{iKa}} \\ \frac{(1+e^{2iKa})\left(e^{\frac{l}{\xi}} - 1\right)}{e^{iKa}} & \frac{e^{2iKa + \frac{l}{\xi}} + 2\cosh\left(\frac{l}{\xi}\right) - 2}{e^{iKa}} \end{pmatrix} \end{aligned} \quad (3.10)$$

e da cui possiamo ricavare il coefficiente di trasmissione totale

$$\begin{aligned} T_{totale} &= t_{totale} \cdot t_{totale}^* = \\ &= \frac{1}{6 + 2 \left(e^{\frac{l}{\xi}} - 1 \right)^2 \cos(2Ka) - 8 \cosh\left(\frac{l}{\xi}\right) + 3 \cosh\left(\frac{2l}{\xi}\right) + \sinh\left(\frac{2l}{\xi}\right)} \end{aligned} \quad (3.11)$$

che ha un massimo per $2Ka = \pi$ ovvero

$$\begin{aligned} T_{max} &= \frac{1}{6 + 2 \left(e^{\frac{l}{\xi}} - 1 \right)^2 \cos(\pi) - 8 \cosh\left(\frac{l}{\xi}\right) + 3 \cosh\left(\frac{2l}{\xi}\right) + \sinh\left(\frac{2l}{\xi}\right)} \\ &= \frac{e^{\frac{2l}{\xi}}}{\left(1 - 2e^{\frac{l}{\xi}} \right)^2}. \end{aligned} \quad (3.12)$$

Siccome il picco di trasmissione è molto stretto possiamo sviluppare $\cos(2Ka)$ nell'intorno di $K = \frac{\pi}{2a}$ ovvero $\cos(2Ka) \simeq - \left(1 - \frac{(2Ka)^2}{2} \right)$ che, sostituito nell'equazione 3.11,

ci mostra che il picco ha una forma Laurentziana:

$$T_{totale} = \frac{1}{6 + 2 \left(e^{\frac{l}{\xi}} - 1 \right)^2 (2K^2 a^2 - 1) - 8 \cosh\left(\frac{l}{\xi}\right) + 3 \cosh\left(\frac{2l}{\xi}\right) + \sinh\left(\frac{2l}{\xi}\right)}. \quad (3.13)$$

Per ottenere la larghezza ΔK_1 del picco basta risolvere per K l'equazione $T_{totale} = \frac{T_{max}}{2}$ e prendere la distanza fra le due soluzioni:

$$\Delta K_1 = \frac{\left| 1 - 2e^{\frac{l}{\xi}} \right|}{a \sqrt{e^{\frac{2l}{\xi}} \left(e^{\frac{l}{\xi}} - 1 \right)^2}}. \quad (3.14)$$

Nella nostra ipotesi che $l \gg \xi$ possiamo fare l'approssimazione $e^{\frac{l}{\xi}} \gg 1$ e quindi semplificare l'equazione 3.14 per ottenere

$$\Delta K_1 \cong \frac{2}{a} e^{-\frac{l}{\xi}} \quad (3.15)$$

ovvero abbiamo ottenuto che la larghezza di un picco decresce esponenzialmente con lo spessore del campione.

Nel caso di una singola risonanza abbiamo che $l \simeq \frac{L}{2}$ ma se ci sono n risonanze il tragitto che la luce dovrà percorrere per uscire sarà più breve (approssimativamente potremo scrivere $l \simeq \frac{L}{n+1}$) e quindi

$$\Delta K_n \simeq \frac{2}{a} e^{-\frac{L}{(n+1)\xi}}. \quad (3.16)$$

Siccome a è una grandezza ignota abbiamo bisogno di riscrivere la relazione fra le larghezze dei picchi al variare di n in modo che si semplifichi. In particolare possiamo scrivere

$$\frac{\Delta K_n}{\Delta K_1} = \frac{\frac{2}{a} e^{-\frac{L}{(n+1)\xi}}}{\frac{2}{a} e^{-\frac{L}{2\xi}}} = e^{\frac{L}{2\xi} \left(\frac{n-1}{n+1} \right)} \Rightarrow \Delta K_n = e^{\frac{L}{2\xi} \left(\frac{n-1}{n+1} \right)} \Delta K_1 \quad (3.17)$$

ed infine

$$P_n = \left(e^{\frac{L}{2\xi} \left(\frac{n-1}{n+1} \right)} \Delta K_1 \frac{M}{B} \right)^{n-1}. \quad (3.18)$$

Prendiamo il caso di un campione da 250 strati: in un intervallo di lunghezze d'onda di $1\mu m$ (corrispondente ad un intervallo $B = \pi 10^6 m^{-1}$) si possono contare (vedi la figura 2.4) circa 15 picchi e di questi il più stretto ha una larghezza stimabile in $3nm$ ovvero $\Delta K_1 = 1,6 \cdot 10^4 m^{-1}$.

Gli altri parametri sono lo spessore $L = 55,5 \mu m$ e la lunghezza di localizzazione per la quale possiamo prendere la nostra stima sperimentale $\xi = 15,9 \mu m$ ottenendo

$$P_2 \approx 14 \% . \quad (3.19)$$

Questa è la probabilità che un picco sia dovuto ad uno stato concatenato di due risonanze invece che da una sola; con la stessa formula possiamo calcolare la probabilità totale che un picco sia dovuto ad uno stato concatenato di n risonanze con $n \geq 2$

$$P_{tot} = \sum_{n=2}^{\infty} \left(e^{\frac{L}{2\xi} \left(\frac{n-1}{n+1} \right)} \Delta K_1 \frac{M}{B} \right)^{n-1} = 19,3\% . \quad (3.20)$$

La nostra probabilità di trovarne uno sarà più bassa di così perché, col nostro sistema di misura, riusciremo a vederlo solo se non eccitiamo contemporaneamente altri stati (nel qual caso l'effetto che stiamo cercando sarebbe nascosto dall'interferenza fra i picchi).

3.4.3 Evidenze sperimentali per gli stati concatenati

Andando a controllare tutte le misure fatte sull'intero *set* di campioni ne abbiamo trovate due che possiedono le caratteristiche che ci interessano (tempo di decadimento alto associato ad un ritardo pronunciato). La prima è mostrata in figura 3.10: nello spettro di trasmissione si vede una larga struttura di picchi molto sovrapposti fra di loro come ci aspettiamo che avvenga in uno stato concatenato e l'evoluzione temporale presenta un fronte di discesa praticamente speculare a quello di salita (ovvero la misura del tempo di decadimento è limitata dalla risoluzione del sistema di misura) e, come si vede dal confronto con l'impulso di eccitazione, un ritardo di 360 fs. Riscrivendo l'equazione 3.17 in funzione della lunghezza d'onda possiamo dare una stima della

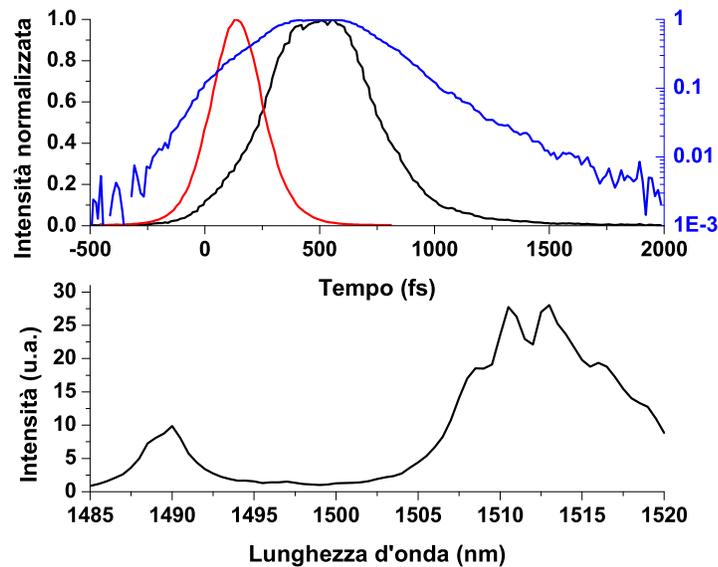


Figura 3.10: Osservazione di uno stato concatenato su di un campione composto da 250 strati ad una lunghezza d'onda centrale di 1505 nm. Lo spettro di trasmissione è stato preso ad una lunghezza d'onda centrale di 1500 nm e per questo è visibile un debole picco a 1490 nm che però non si riflette nella misura risolta in tempo.

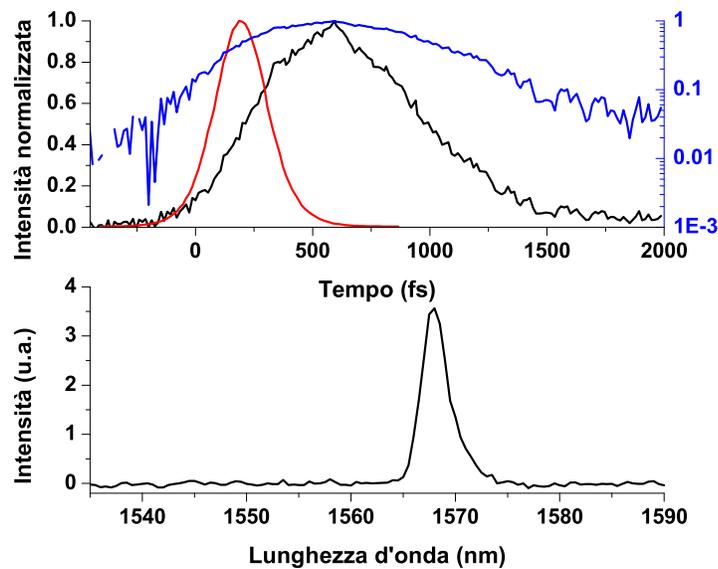


Figura 3.11: Osservazione di un probabile stato concatenato su di un campione composto da 350 strati ad una lunghezza d'onda centrale di 1570 nm.

larghezza che ci saremmo aspettati per il picco:

$$\begin{cases} \Delta K = \frac{2\pi}{\lambda^2} \Delta \lambda \\ \Delta K_n = e^{\frac{L}{2\xi} \left(\frac{n-1}{n+1} \right)} \Delta K_1 \end{cases} \Rightarrow \frac{2\pi}{\lambda_c^2} \Delta \lambda_n = e^{\frac{L}{2\xi} \left(\frac{n-1}{n+1} \right)} \frac{2\pi}{\lambda_s^2} \Delta \lambda_1 \Rightarrow \frac{\Delta \lambda_n}{\lambda_c^2} = e^{\frac{L}{2\xi} \left(\frac{n-1}{n+1} \right)} \frac{\Delta \lambda_1}{\lambda_s^2} \quad (3.21)$$

dove λ_c e λ_s sono rispettivamente le lunghezze d'onda cui si trova il picco allargato dovuto allo stato concatenato ed il picco dovuto alla risonanza singola con il quale lo stiamo confrontando. Nel nostro caso abbiamo

$$\lambda_c \cong 1512 \text{ nm}$$

$$\lambda_s \cong 1071 \text{ nm}$$

$$\Delta \lambda_1 \cong 3 \text{ nm}$$

e quindi possiamo stimare $\Delta \lambda_2 \cong 10,7 \text{ nm}$. Tramite un *fit* gaussiano della struttura di picchi mostrata in figura 3.10 otteniamo una larghezza di $9,3 \text{ nm}$ che è perfettamente in accordo con la nostra stima teorica.

L'altro esempio è mostrato in figura 3.11. In questo caso l'interpretazione è meno chiara perchè il segnale è molto basso e quindi non è facile osservare la forma dell'evoluzione temporale; in più la stima di ΔK_1 è problematica per via della risoluzione delle nostre misure e quindi, in questo caso, non possiamo fare un confronto fra le previsioni teoriche e l'esperimento. Anche in questo caso però è evidente il ritardo di 415 fs e che il fronte di discesa dell'impulso non è qualitativamente diverso da quello di salita.

Anche se nessuna delle due misure è conclusiva, in entrambi i casi (e specialmente nel primo, dove l'esperimento e la teoria sono in ottimo accordo) ci sono forti evidenze che si tratti effettivamente di stati concatenati e non semplicemente di trasmissione da singole risonanze o complicati effetti di interferenza fra diversi picchi separati. Questa è, a nostra conoscenza, la prima evidenza sperimentale di questa proprietà dei sistemi disordinati (non solo ottici, una trattazione analoga può essere fatta per il trasporto degli elettroni [14]) e della localizzazione di Anderson.

Capitolo 4

Effetti di tipo LASER nei sistemi disordinati

Nella loro accezione più comune i Laser sono essenzialmente composti da un mezzo attivo, che opportunamente eccitato darà luogo ad una fluorescenza spettralmente estesa, e da una cavità risonante capace di selezionare un numero limitato dei modi che compongono la fluorescenza. Nelle condizioni appropriate questi modi vengono amplificati tramite il processo di emissione stimolata [25] dando origine ad un fascio di luce coerente comunemente nota come luce laser.

Da alcuni anni c'è un interesse crescente della comunità scientifica verso una nuova categoria di emettitori di luce (noti in letteratura come “*random laser*”) che sfruttano il processo dell'emissione stimolata assieme alle proprietà di trasporto tipiche dei sistemi disordinati [26]. Nel caso in cui il sistema sia in un regime diffusivo la luce emessa spontaneamente compie un moto browniano e quindi percorre un cammino molto lungo (rispetto alle dimensioni del campione) prima di uscire dal campione stesso. Lungo questo cammino ogni fotone può dare origine ad un fenomeno di emissione stimolata noto come “amplificazione dell'emissione spontanea” (ASE) [25]. Siccome, in questo regime, più è grande il volume del campione più lungo sarà il cammino che un fotone percorrerà prima di uscire, il guadagno dipenderà dal volume del mezzo attivo e le perdite dalla sua superficie. Ma, dato che il volume cresce più velocemente della superficie con le dimensioni del sistema, per ogni geometria esisterà un volume critico oltre il quale il guadagno supererà le perdite e quindi ci sarà una soglia (analoga a quella

laser) oltre la quale l'intensità della luce nel campione diverge.

Questo tipo di processi diventa ancora più interessante quando si passa da un regime di trasporto diffusivo ad uno localizzato. Infatti gli stati localizzati all'interno del sistema (di cui abbiamo studiato le proprietà nei capitoli precedenti) possono fare le veci delle cavità risonanti e quindi dare una retroazione coerente all'amplificazione del segnale. In presenza di un guadagno queste frequenze saranno quelle dominanti nella competizione dei modi e potranno dar luogo a righe di emissione analoghe a quelle dei Laser convenzionali.

4.1 Descrizione dei sistemi disordinati uno dimensionali con guadagno tramite le matrici di trasferimento

Il formalismo che abbiamo sviluppato nell'appendice B ci permette di trattare il caso di indice di rifrazione complesso, ovvero le situazioni in cui vengano introdotte perdite o guadagno, nelle nostre simulazioni numeriche. Dobbiamo invece notare che la trattazione analitica sviluppata nel capitolo 1 ha fra le sue ipotesi $|r|^2 + |t|^2 = 1$ e quindi i risultati lì ottenuti non sono realmente consistenti con la tipologia di sistemi che adesso vogliamo studiare. Potremo comunque usare alcuni di questi risultati (in particolare la stima di ξ) come linee guida per i nostri ragionamenti.

Tramite un'analisi numerica dei nostri campioni possiamo osservare che la presenza di perdite e di guadagno uniformi in frequenza hanno un effetto estremamente non lineare sullo spettro di trasmissione. Osservando la figura 4.1 vediamo che, rispetto al caso dove n è reale, l'assorbimento rende i picchi meno pronunciati e più larghi mentre il guadagno (nella simulazione i coefficienti di assorbimento e di guadagno sono stati scelti uguali in valore assoluto) produce l'effetto opposto, restringendo i picchi attorno al loro valore centrale ed incrementando la trasmissione T . Nel grafico (d) della figura 4.1 possiamo anche osservare il fatto interessante che queste variazioni non sono semplicemente lineari ma ogni picco si comporta in modo differente dagli altri, in particolare l'altezza dei picchi sembra crescere e decrescere in modo diverso picco

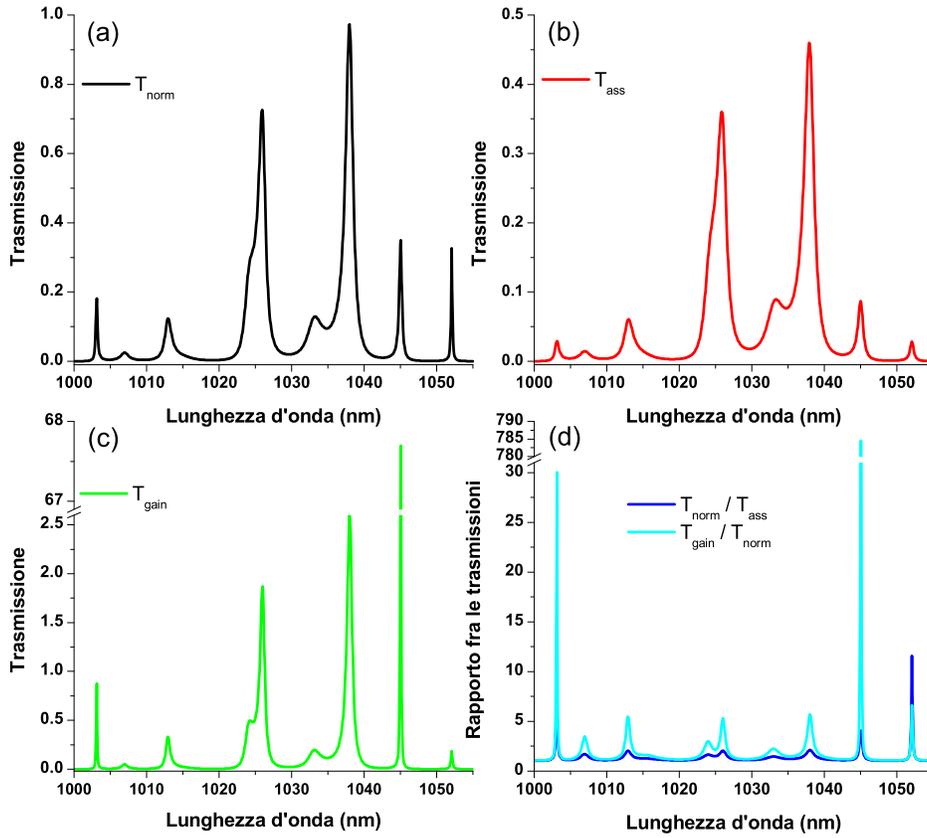


Figura 4.1: Simulazioni dello spettro di trasmissione di un campione composto da 250 strati. Nei grafici (a), (b) e (c) vengono mostrati gli spettri di trasmissione corrispondenti rispettivamente al caso di indice di rifrazione reale (T_{norm}), ad un coefficiente di assorbimento pari a $2 \cdot 10^3 \text{ m}^{-1}$ (T_{ass}) e ad un guadagno eguale di pari valore in modulo (T_{gain}). Nel grafico (d) sono riportati i rapporti $\frac{T_{norm}}{T_{ass}}$ e $\frac{T_{gain}}{T_{norm}}$.

per picco. Possiamo intuitivamente attribuire questa differenza di comportamento alla diversa efficienza delle varie risonanze in analogia con i fattori di qualità Q associabili alle microcavità. I picchi corrispondenti agli stati più efficienti nell'intrappolare la luce (che nelle misure risolte in tempo erano caratterizzati da un decadimento esponenziale molto pronunciato) saranno difatti quelli maggiormente influenzati dalla presenza di un guadagno e dell'assorbimento. Questa interpretazione è supportata dal fatto che i picchi maggiormente intensificati dal guadagno (ad esempio quello ad una lunghezza d'onda di 1045 nm) sono gli stessi che vengono depressi dall'assorbimento mentre i picchi più larghi (associabili a cavità con un basso fattore di qualità) sono relativamente

poco influenzati in entrambi i casi.

È bene notare le nostre misure di trasmissione si riferiscono sempre a campioni reali e quindi soggetti a presentare assorbimento ed altre perdite. Quando queste non siano trascurabili dobbiamo aspettarci che i picchi con un fattore di qualità più alto vengano fortemente depressi ed allargati rendendoli difficilmente identificabili dalla misura semplice di T . Se però analizziamo come cambia il profilo di T (ovvero la trasmissione normalizzata) al variare del guadagno introdotto (figura 4.2) appare evidente la non linearità della crescita dei vari picchi. Anche nella regione dove il guadagno non riesce a compensare l'assorbimento (ovvero si ha un guadagno negativo) si nota come il profilo

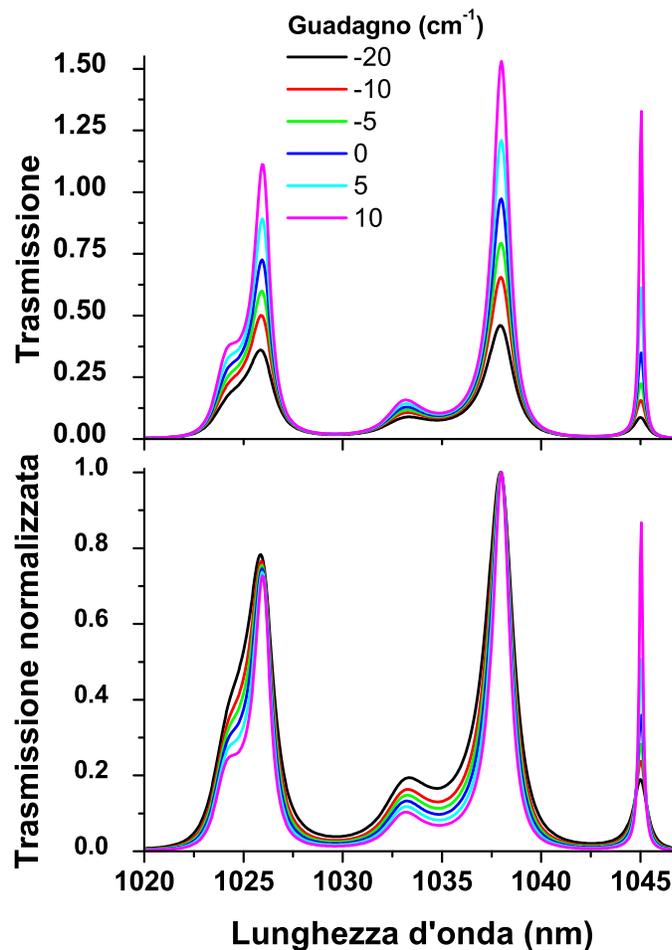


Figura 4.2: *Simulazione dello spettro di trasmissione al variare del guadagno (un valore di guadagno negativo è equivalente ad introdurre delle perdite). In basso gli stessi spettri sono riportati normalizzati.*

del picco a 1045 nm comunque cresce rapidamente rispetto agli altri.

4.2 Introduzione di un guadagno nei campioni di silicio poroso

La porosità dei nostri campioni suggerisce l'interessante possibilità che questi possano essere infiltrati con dei fluidi, anche viscosi, che, a loro volta, possano essere usati come solventi per un mezzo attivo come i coloranti laser (“*dye*”). In questo caso possiamo definire un parametro di guadagno $n_2 \sigma_{em}$, dove σ_{em} è la sezione d'urto di emissione della molecola di colorante ed n_2 la densità di molecole che si trovano nello stato eccitato e quindi nella condizione di poter emettere. Ovviamente n_2 è limitata superiormente dalla densità totale delle molecole di *dye* presenti nel sistema. Definiamo anche la lunghezza di guadagno $l_{gain} = \frac{1}{n_2 \sigma_{em}}$ che rappresenta il percorso sopra il quale la luce viene amplificata di un fattore e . In analogia con questa definiamo la lunghezza di estinzione $l_{ext} = \frac{1}{k_{ext}}$ dove il coefficiente di estinzione k_{ext} è pari alla somma del coefficiente di assorbimento k_{ass} e del coefficiente di perdita per dispersione k_{sc} (in un sistema unidimensionale possiamo considerare persi i fotoni che sono diffusi fuori dall'asse ottico ad opera delle impurità anche se questi rimangono all'interno del campione).

La condizione di soglia oltre la quale il guadagno supera le perdite può quindi essere

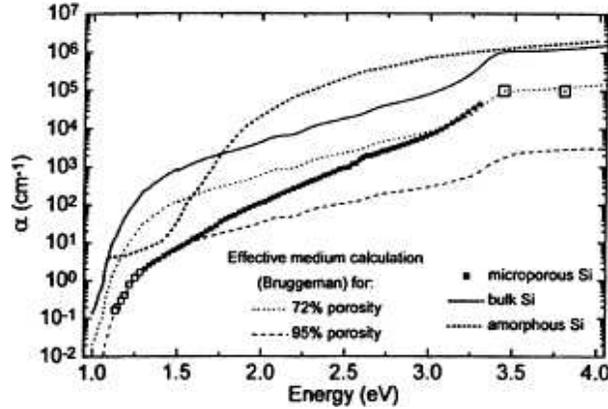


Figura 4.3: Curve di assorbimento in funzione dell'energia per vari gradi di porosità del silicio (per gentile concessione di L. Pavesi [15]).

riscritta come $l_{gain} < l_{ext}$ (ovvero: il percorso necessario alla luce per essere amplifica-

ta di un fattore e è più breve di quello necessario per essere depressa di dello stesso fattore). Dalla figura 4.3 possiamo vedere che il coefficiente di assorbimento dipende fortemente dall'energia dell'onda incidente ed in particolare si può osservare una forte flessione per energie minori di $1,25 \text{ eV}$ equivalente ad una lunghezza d'onda di circa 990 nm . Dovremo quindi cercare di usare dei coloranti che fluorescano su lunghezze d'onda $\gtrsim 1 \text{ }\mu\text{m}$ in modo da ridurre le perdite; dobbiamo però notare che in questa regione spettrale l'efficienza dei *dye* è piuttosto bassa, soprattutto se confrontata con quella dei coloranti che emettono nel visibile (per esempio le rodamine o il DCM) [27] e quindi sarà necessario cercare un compromesso fra σ_{em} alta e k_{ext} bassa.

Un altro parametro importante da considerare è la concentrazione n_2 delle molecole di colorante nello stato eccitato. Abbiamo già detto che questa sarà limitata dalla concentrazione totale n_{tot} di colorante presente che a sua volta sarà limitata dalla porosità stessa del sistema (i nostri campioni hanno una porosità media di circa il 63% e solo questa frazione di volume potrà essere occupata dal solvente) e dalla massima concentrazione di colorante nel solvente che riusciremo ad ottenere mantenendone inalterate le proprietà di emissione.

4.2.1 Stima del numero di fotoni che possono essere assorbiti dal colorante

Quando un certo numero di fotoni $\Phi(0)$, ad una certa lunghezza d'onda, incidono sul campione una parte di questi verrà assorbito dal colorante (il cui coefficiente di assorbimento è k_{dye}) ed un'altra parte sarà assorbita dal silicio. Possiamo scrivere la variazione del numero di fotoni Φ in funzione della profondità x all'interno del campione come

$$\frac{\partial \Phi(x)}{\partial x} = - (k_{ext} + k_{dye}) \Phi(x) \quad (4.1)$$

la cui soluzione è banalmente

$$\Phi(x) = \Phi(0) e^{-(k_{ext} + k_{dye}) x} . \quad (4.2)$$

Il numero di molecole N_2 di colorante nello stato eccitato è uguale al numero di fotoni assorbiti dal colorante stesso e quindi

$$\begin{aligned} \frac{\partial N_2(x)}{\partial x} &= k_{dye} \Phi(x) \Rightarrow \\ \Rightarrow \partial N_2(x) &= k_{dye} \Phi(0) e^{-(k_{ext}+k_{dye}) x} \partial x \Rightarrow \\ \Rightarrow N_2(x) &= \frac{k_{dye}}{k_{ext} + k_{dye}} \Phi(0) \left(1 - e^{-(k_{ext}+k_{dye}) x} \right) \end{aligned} \quad (4.3)$$

dove abbiamo imposto la condizione al contorno $N_2(0) = 0$.

Notiamo che $N_2(x)$ si asintotizza sul suo massimo dopo uno spessore dell'ordine di $\frac{1}{k_{ext}+k_{dye}} \approx 10 \mu m$ ovvero per i campioni più spessi (un campione da 200 strati ha approssimativamente uno spessore di $44 \mu m$) potremo considerare che tutta la luce venga assorbita all'interno del campione. Di conseguenza ci sarà una frazione massima dei fotoni incidenti che possono essere assorbiti dal colorante indipendentemente dallo spessore del campione

$$\left(\frac{N_2}{\Phi(0)} \right)_{max} = \frac{k_{dye}}{k_{ext} + k_{dye}}. \quad (4.4)$$

Notiamo che k_{dye} dipende in maniera pressappoco lineare dalla concentrazione del colorante e quindi, aumentando quest'ultima, potremo aumentare N_2 (e quindi n_2) ma questa dipendenza non sarà lineare come avremmo potuto aspettarci.

4.2.2 Infiltrare il silicio poroso

Da un punto di vista chimico la possibilità di infiltrare o meno un sistema nanoporoso come il nostro è piuttosto complicato e, a priori, non c'è alcuna garanzia che si possa fare con ogni solvente. Il primo passo nella realizzazione di questo esperimento è stato dunque di fare alcune prove sulla fattibilità dell'infiltrazione; per prima cosa abbiamo preso un campione che non presentasse fratture o rotture ed abbiamo depositato una goccia di solvente su una delle due facce osservando se, dopo qualche minuto, l'altra faccia si era bagnata o meno. Un altro criterio che abbiamo usato è stato di misurare lo spettro di trasmissione di un campione prima e dopo il tentativo di infiltrazione. Se il solvente si sostituisce all'aria nei pori l'indice di rifrazione efficace degli strati cambia e, in particolare, diminuisce il contrasto fra n_A ed n_B rendendo tutti i picchi dello spettro molto più larghi. In figura 4.4 è mostrato un esempio di una misura di

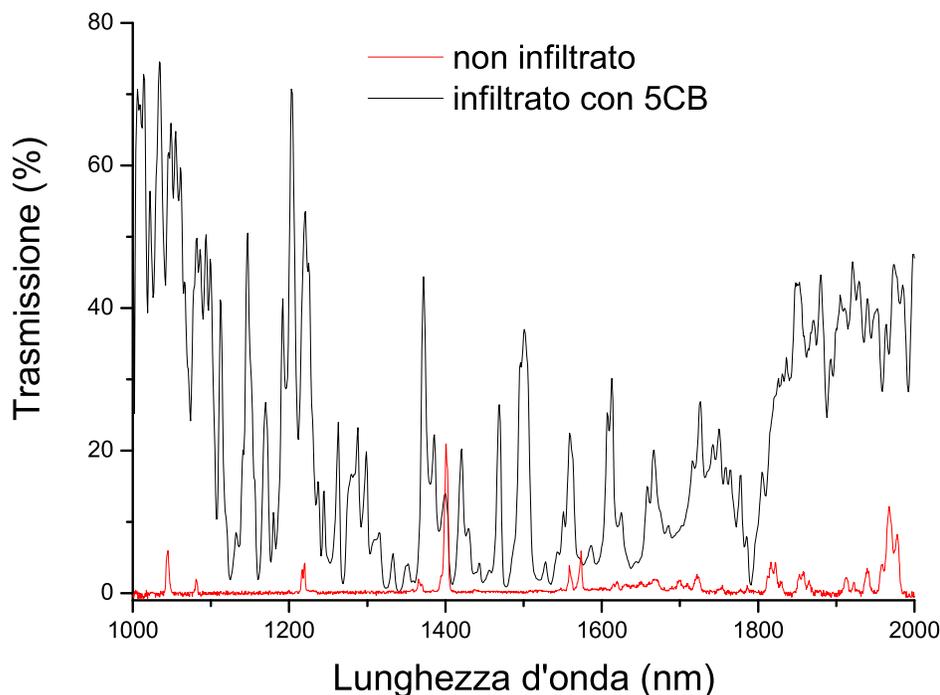


Figura 4.4: *Spettro di trasmissione di un campione da 300 strati prima e dopo che venisse infiltrato col cristallo liquido 5CB.*

questo tipo; in questo caso l'effetto è molto evidente perché il campione è stato infiltrato con un materiale ad alto indice di rifrazione (un cristallo liquido chiamato il 5CB): a temperatura ambiente il 5CB è in fase nematica (e quindi presenta un effetto di birifrangenza) ma, siccome siamo in assenza di un forte campo magnetico esterno, il direttore del cristallo liquido sarà organizzato in poli-dominii e quindi possiamo considerare un indice di rifrazione efficace pari alla media fra l'indice di rifrazione ordinario e quello straordinario $n_{eff} \sim 1,6$. Possiamo notare che, oltre che allargati, i picchi appaiono anche notevolmente più alti; questa è un artefatto della risoluzione finita del sistema di misura. Quando i picchi sono più larghi riusciamo a risolverli meglio e li vediamo alla loro altezza reale.

Notiamo anche che le due misure sono necessariamente prese su punti leggermente diversi del campione. Come abbiamo già discusso nel capitolo 2 le disomogeneità laterali dei campioni sono tali da non permetterci di confrontare direttamente misure prese su punti diversi e quindi ci aspettiamo che i due spettri appaiono anche qualitativamente

differenti.

I risultati di queste prove sono stati incoraggianti. L'infiltrazione si è dimostrata possibile con tutti i solventi idrofobi testati (metanolo, etanolo, DCE, DCM, Eg e vari cristalli liquidi) ed in alcuni casi anche reversibile (nel senso che è stato possibile ripulire il campione dal solvente ritornando alle condizioni di partenza). Un risultato interessante è stato che, mentre l'infiltrazione con solventi viscosi come l'Eg o i cristalli liquidi sono stabili nel tempo, i solventi più volatili come il metanolo o l'etanolo evaporano completamente dai pori nell'arco di pochi minuti non risultando quindi adatti ad essere usati per infiltrare dei coloranti laser nei nostri campioni.

4.3 Misure di emissione dai sistemi disordinati con guadagno

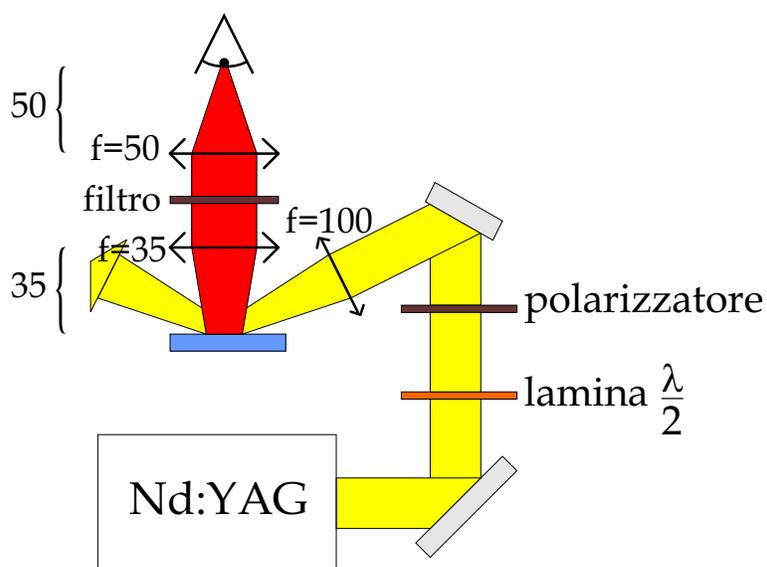


Figura 4.5: Diagramma del sistema di misura dell'emissione. Tutte le lunghezze focali e le distanze sono riportate in millimetri.

Per la misura abbiamo illuminato il campione con la prima o la seconda armonica (a seconda di quale colorante stavamo usando) di un laser a Nd:YAG (i cui dati sono riportati in tabella 4.1) in modo tale che il riflesso uscisse lontano dall'asse ottico e

non entrasse nel rivelatore. Il diametro del fuoco sul campione poteva essere regolato cambiando la distanza fra la lente con focale da 10 cm ed il campione ed è stato scelto essere circa 1 mm. La ragione di questa scelta è che focalizzando maggiormente si rischia di danneggiare il campione anche per potenze di eccitazione molto basse.

Il sistema di misura era formato da una lente a focale corta per raccogliere la luce, una lente per focalizzare il segnale sull'ingresso del rivelatore e un filtro per tagliare l'eventuale residuo della luce del laser a Nd:YAG.

Il processo di infiltrazione lascia sempre, sulla superficie del campione, una sottile pellicola di solvente e colorante che fluoresce una volta eccitata dal laser. Questa luce si va a sovrapporre al segnale che vogliamo misurare, per ridurre gli effetti abbiamo sempre eccitato il campione dal lato opposto a quello su cui era stata praticata l'infiltrazione.

Tabella 4.1: Specifiche del Laser Nd:YAG usato come pompa per i campioni.

Modello	Lunghezza d'onda emessa	Energia minima per impulso	Energia massima per impulso	Durata di un impulso	Periodo di ripetizione
QUANTEL YG580 con <i>Q-switch</i> attivo	1064 nm	50 μJ	1 J	5 ns	sparo singolo o regolabile da 1 a 10 Hz
	532 nm	1 μJ	200 mJ		

4.3.1 Infiltrazione con coloranti infrarossi

Come abbiamo già detto l'assorbimento del silicio poroso dipende fortemente dalla lunghezza d'onda della radiazione incidente e, in particolare, diminuisce drasticamente quando $\lambda \gtrsim 1\mu m$. Il nostro primo tentativo è stato quindi quello di usare dei coloranti infrarossi in modo da ridurre sensibilmente k_{ext} .

Abbiamo lavorato con i coloranti IR-26¹ e IR-5² (entrambi prodotti dalla "Exciton" [27]) che hanno rispettivamente il massimo della fluorescenza a 1290 nm e 1320 nm [27] disciolti in 1,2-dicloroetano (DCE) ed eccitati con la prima armonica del Laser

¹Noto anche come *dye 26*.

²Noto anche come *Q-switch 5*.

Tabella 4.2: *Specifiche delle componenti del rivelatore usato per misurare i segnali nell'infrarosso.*

Spettrometro		Array di InGaAs	
Modello	<i>Chromex 250 is/sm</i>	Modello	<i>XP 1.7</i>
Intervallo spettrale di funzionamento	da 400 nm a 2 μm	Risposta spettrale	Maggiore del 95 % fra 0,9 e 1,67 μm
Finestra in uscita	$\sim 62,7$ nm	Risoluzione	~ 0.12 nm

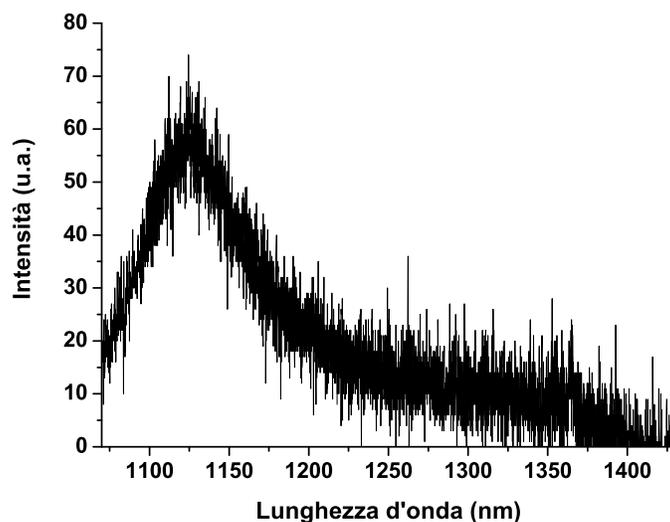


Figura 4.6: *Spettro di fluorescenza dell'IR-26 disciolto nel DCE con una concentrazione di 1 mmol/l.*

a Nd:YAG. Il rivelatore che abbiamo usato è composto da uno spettrometro *Chromex 250 is/sm* [17] ed un *array* di fotodiodi di InGaAs *XP 1.7* [28]. Entrambi questi coloranti hanno un'efficienza molto bassa, tanto che tutte le nostre misure di fluorescenza hanno mostrato uno spettro di emissione appena misurabile anche per alte energie di pompa e lunghi tempi di esposizione (un esempio è mostrato in fig. 4.6). Dati questi risultati non è stato possibile procedere all'infiltrazione dei campioni ed alle seguenti misure di emissione.

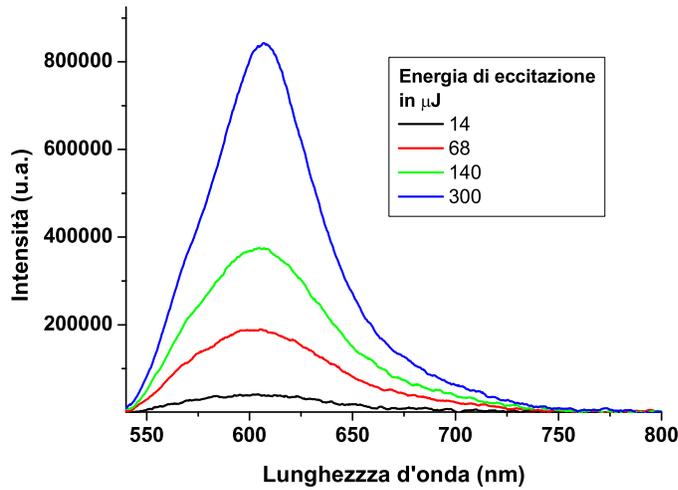


Figura 4.7: Spettro di fluorescenza del DCM disciolto nel 5CB con una concentrazione di 1 mmol/l.

4.3.2 Infiltrazione con DCM

Non potendo usare un colorante nell'infrarosso per diminuire le perdite abbiamo provato ad utilizzarne uno molto efficiente nel visibile. In particolare abbiamo deciso di utilizzare il DCM che ha un'efficienza nominale³ del 27 % ed una fluorescenza attorno ai 600 nm. Come solvente abbiamo usato dei cristalli liquidi (in particolare il 5CB) perché ci sono alcuni vantaggi notevoli nel loro uso: innanzi tutto da esperimenti precedenti [29] avevamo già esperienza che molti coloranti laser (fra cui il DCM e le rodamine) si sciolgono nei cristalli liquidi mantenendo ottime proprietà di emissione, seconda di poi hanno un'alta viscosità e non evaporano, quindi l'infiltrazione rimane stabile anche per giorni, infine si sciolgono completamente nel metanolo permettendo la pulizia pressoché perfetta dei campioni dopo l'uso. Inoltre la temperatura oltre la quale si danneggiano è elevata permettendo di usare alte intensità di pompa.

Uno svantaggio dei cristalli liquidi è il loro alto indice di rifrazione che porta l'indice di rifrazione efficace dei due tipi di strati che compongono i campioni da $n_A = 1,4$ e $n_B = 2,1$ a $n_A = 1,98$ e $n_B = 2,47$.

Usando l'equazione 1.17 possiamo quindi calcolare che l'infiltrazione con il cristallo liquido porta la lunghezza di localizzazione da $\xi \cong 4,8 \mu m$ a $\xi \cong 11,46 \mu m$ (per

³definita dal produttore come il rapporto fra l'energia in ingresso e l'energia in uscita [27]

Tabella 4.3: *Specifiche dello spettrometro usato per misurare i segnali nel visibile [30].*

Modello	Intervallo spettrale di funzionamento	Sensibilità	Risoluzione	Rapporto segnale/rumore
USB2000	da 500 a 1100 μm	$2,9 \cdot 10^{-17} \frac{J}{conteggio}$	0,3 nm	250:1 (sul massimo)

$\lambda = 600 \text{ nm}$) che comunque è ancora ben al di sotto dello spessore dei nostri campioni.

A questo proposito possiamo notare che, come già detto, l'equazione 1.17 non è valida nel caso in cui siano presenti delle perdite o del guadagno. Notiamo anche che l'equazione 1.17 predice una divergenza di ξ per $\lambda = \frac{\lambda_c}{2} = 750 \text{ nm}$ perché a quella lunghezza d'onda il campione è atteso essere trasparente dal modello teorico.

Possiamo definire un fattore di guadagno complessivo del sistema come $g = \sigma_{em} n_2 - (k_{sc} + k_{ass}) m^{-1}$. Una stima ragionevole delle perdite per dispersione è $k_{sc} = 10^4 m^{-1}$ (vedi il capitolo 1) mentre dalla figura 4.3 possiamo estrapolare che l'assorbimento alla lunghezza d'onda del laser di pompa (532 nm) è $k_{ass} = 10^5 m^{-1}$. Dalle tabelle [27] possiamo ricavare che la sezione d'urto di emissione del DCM è $\sigma_{em} \cong 10^{-20} m^2$. La stima di n_2 è un po' più complicata e merita una trattazione più accurata: dall'equazione 4.4 vediamo che, per campioni abbastanza spessi, $N_2 = \frac{k_{dye}}{k_{sc} + k_{ass} + k_{dye}} \Phi(0)$ dove k_{dye} , per una lunghezza d'onda di 532 nm, può essere stimata dalle tabelle fornite dai produttori [27] in $k_{dye} = 1,4 \cdot 10^4 \frac{l}{mol \text{ cm}}$. Assumendo una concentrazione del colorante nel solvente di 1 mmol/l e ricordandosi che i nostri campioni hanno una porosità media del 63% avremo una concentrazione totale di colorante nel campione di $0,63 \text{ mmol/l}$ e quindi $k_{dye} = 8,82 \cdot 10^2 m^{-1}$; complessivamente quindi

$$N_2 \simeq 7,95 \cdot 10^{-3} \Phi(0) .$$

Da qui possiamo ricavare $n_2 = \frac{N_2}{V}$ dove V è il volume della zona eccitata dal laser di pompa; considerando uno *spot* sul campione con raggio $r = 0,5 \text{ mm}$ e chiamando d lo spessore del campione (che nel nostro caso può variare da 22 a $77,7 \mu m$) potremo

scrivere

$$n_2 = \frac{k_{dye}}{k_{sc} + k_{ass} + k_{dye}} \frac{1}{r^2 \pi d} \Phi(0) .$$

Dato che la radiazione di pompa è essenzialmente monocromatica con $\lambda_p = 532 \text{ nm}$ possiamo usare la relazione $E = h \frac{c}{\lambda}$ per calcolare che ogni fotone trasporterà $3,37 \cdot 10^{-19} \text{ J}$ di energia. Possiamo quindi riscrivere $\Phi(0) \cong E_p (2,68 \cdot 10^{18} \text{ J}^{-1})$ dove E_p è l'energia trasportata da un impulso di pompa (espressa in joule).

Possiamo quindi dare una stima del fattore di guadagno complessivo (per un campione da 250 strati, ovvero per $d = 55,5 \mu\text{m}$) di

$$g = \left(\frac{k_{dye}(\lambda_p)}{k_{sc}(\lambda_p) + k_{ass}(\lambda_p) + k_{dye}(\lambda_p)} \frac{1}{r^2 \pi d} \frac{\lambda_p}{h c} E_p \sigma_{em} \right) - (k_{sc}(\lambda_{em}) + k_{ass}(\lambda_{em})) \quad (4.5)$$

$$\simeq (4,89 \cdot 10^6 E_p - 8 \cdot 10^4) \text{ m}^{-1}$$

Dove λ_p è la lunghezza d'onda del fascio di pompa e λ_{em} è la lunghezza d'onda dell'emissione.

Apparentemente questo risultato ci dice che per avere un fattore di guadagno positivo (equivalente alla condizione $l_{gain} < l_{ext}$) abbiamo bisogno di energie di pompa maggiori di 16 mJ, in realtà ci sono ancora alcuni problemi che non abbiamo considerato. Il primo è che nel campione non ci sono infinite molecole di colorante capaci di assorbire l'energia di pompa, difatti con una concentrazione di colorante nel solvente di 1 mmol/l (ovvero $1 \frac{\text{mol}}{\text{m}^3}$) avremo nel volume V (pari a $4,35 \cdot 10^{-11} \text{ m}^3$) circa $1,65 \cdot 10^{13}$ molecole di colorante. Possiamo qualitativamente pensare che raggiungeremo il massimo della pompa quando il numero di molecole eccitate sarà pari al numero di molecole disponibili e quindi

$$1,65 \cdot 10^{13} = N_2 \simeq 7,95 \cdot 10^{-3} \Phi(0) \simeq 7,95 \cdot 10^{-3} (2,68 \cdot 10^{18} \text{ J}^{-1}) E_p \quad (4.6)$$

$$\Rightarrow E_p \simeq \frac{1,65 \cdot 10^{13}}{7,95 \cdot 10^{-3} \cdot 2,68 \cdot 10^{18}} \text{ J} \simeq 77 \mu\text{J} .$$

Per energie di pompa di quest'ordine di grandezza o maggiori non possiamo attenderci che N_2 cresca linearmente con E_p e quindi, in queste condizioni, non potremo raggiungere il valore di n_2 necessario e rendere g positivo.

Un altro problema che ci troviamo ad affrontare è che in nostri campioni non possono

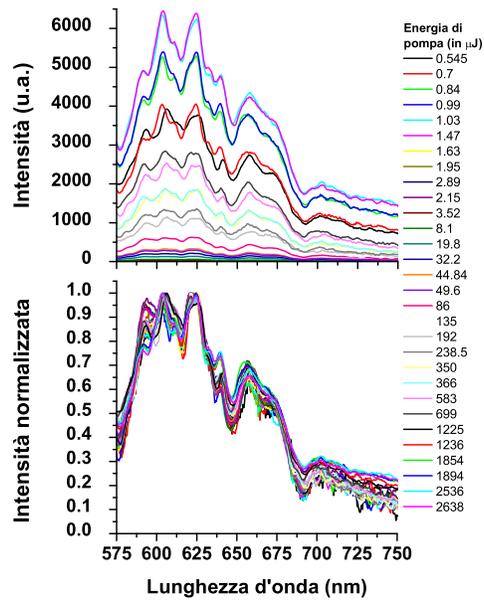


Figura 4.8: *Spettro di emissione di un campione di 100 strati infiltrato con DCM disciolto nel 5CB con una concentrazione di 1 mmol/l in funzione dell'energia di pompa.*

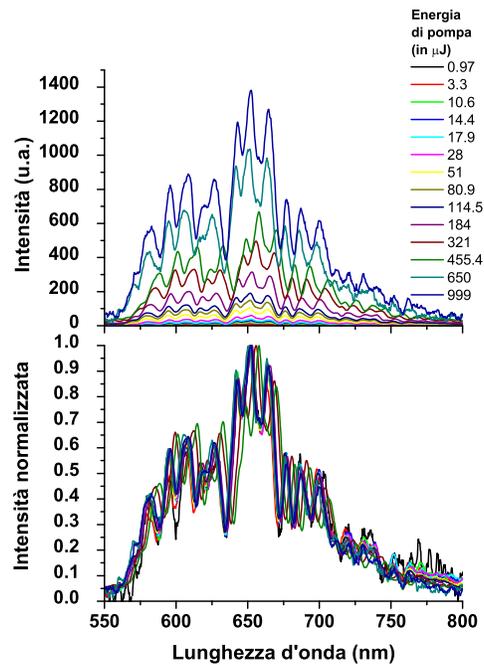


Figura 4.9: *Spettro di emissione di un campione di 200 strati infiltrato con DCM disciolto nel 5CB con una concentrazione di 1 mmol/l in funzione dell'energia di pompa.*

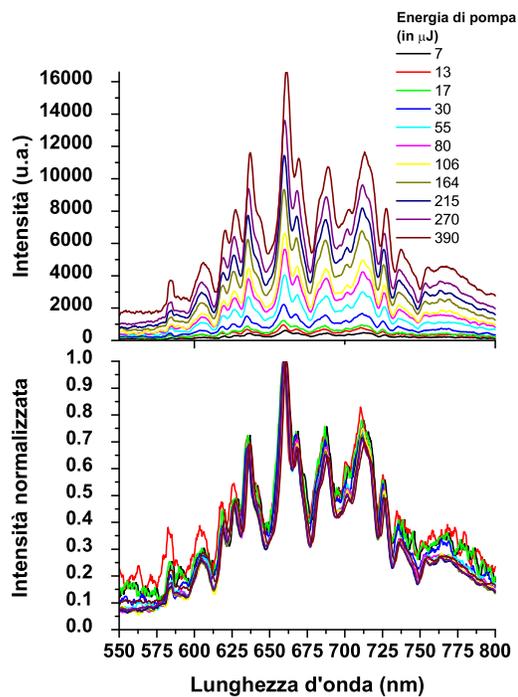


Figura 4.10: Spettro di emissione di un campione di 300 strati infiltrato con DCM disciolto nel 5CB con una concentrazione di 1 mmol/l in funzione dell'energia di pompa.

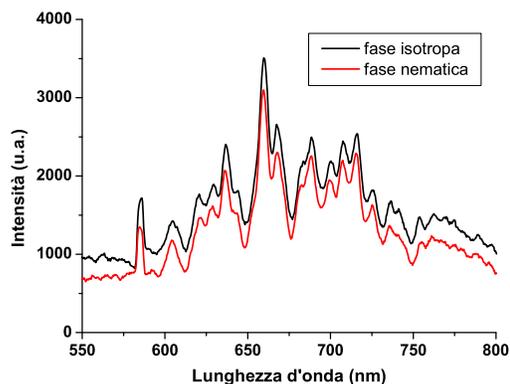


Figura 4.11: Spettro di emissione di un campione di 300 strati infiltrato con DCM disciolto nel 5CB con una concentrazione di 1 mmol/l nel caso dove il cristallo liquido è in fase nematica (temperatura ambiente) e nel caso dove è in fase isotropa (temperatura maggiore di $32,5^\circ$).

sostenere un'energia di pompa arbitraria senza danneggiarsi; sia il silicio (che come abbiamo visto assorbe molto a questa lunghezza d'onda) che il solvente si riscaldano con l'aumentare di E_p fino al punto di bruciarsi. Sperimentalmente abbiamo osservato che il silicio si brucia per impulsi di pompa con energia $\gtrsim 2 \text{ mJ}$ ma che molti solventi si danneggiano molto prima (ad esempio con il glicole etilenico abbiamo riscontrato danneggiamenti già per $E_p = 90 \mu\text{J}$).

Con un sistema del genere non siamo quindi in grado di ottenere un fattore di guadagno positivo e quindi di ottenere un vero e proprio effetto di tipo LASER nei nostri campioni. È tuttavia possibile eseguire alcune osservazioni interessanti: come abbiamo visto tramite le simulazioni numeriche non è importante avere g positivo per osservare una differenza di comportamento fra i picchi dovuti a risonanze con alto fattore di qualità e quelli debolmente localizzati. Possiamo quindi sperare che alcuni dei nostri campioni presentino, nell'intervallo di lunghezze d'onda dove la fluorescenza del colorante è efficiente, almeno un picco fortemente localizzato che si comporti in modo differente dagli altri. Una tale misura sarebbe una conferma che la teoria che abbiamo sviluppato fino ad ora sia corretta e indicherebbe la fattibilità di un *random laser* 1-D.

Se però osserviamo le figure 4.8, 4.9 e 4.10 vediamo che in nessuno dei tre casi è presente alcuna indicazione di uno stato localizzato all'interno del campione con un alto fattore di qualità Q (nel terzo capitolo abbiamo studiato la differenza di comportamento fra stati con Q diversa). Infatti gli spettri normalizzati alle varie energie di pompa si sovrappongono in maniera quasi perfetta segno che tutti i picchi si stanno comportando in maniera identica al variare di g .

Un effetto che si può notare è che in alcuni casi lo spettro sembra spostato verso l'infrarosso, questo è dovuto al fatto che, per basse energie di pompa è stato necessario integrare per tempi lunghi (fino a 10 secondi) in modo da ottenere un buon rapporto segnale/rumore. In questo tempo il cristallo liquido si riscalda oltre il punto in cui cambia fase e quindi cambia indice di rifrazione. In figura 4.11 sono mostrate due misure dello spettro di emissione prese con il cristallo liquido nelle due fasi che mostrano in maniera chiara l'effetto della temperatura sul campione.

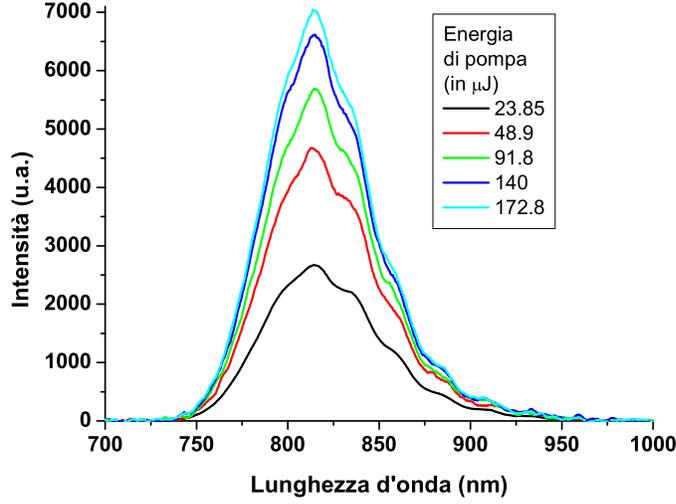


Figura 4.12: Spettro di fluorescenza dello Styryl 9M disciolto nel glicole etilenico con una concentrazione di 2 mmol/l.

4.3.3 Infiltrazione con Styryl 9M

Un buon compromesso fra i coloranti infrarossi, che hanno un'efficienze troppo bassa per poter essere utilizzati, ed i coloranti visibili, per cui gli effetti di assorbimento limitano fortemente il fattore di guadagno, è lo Styryl 9M.

Anche lo Styryl viene pompato con la seconda armonica del laser a Nd:YAG e quindi $k_{ext}(\lambda_p)$ non cambia rispetto al caso del DCM mentre dalle tabelle [27] possiamo stimare $k_{dye}(\lambda_p) = 4 \cdot 10^4 \frac{l}{mol \cdot cm}$. Per il nostro esperimento abbiamo disciolto lo Styryl 9M in glicole etilenico con una concentrazione di 1 mmol/l e quindi, tenendo conto anche del fatto che la porosità media dei nostri campioni è del 63%, avremo $k_{dye}(\lambda_p) = 7,56 \cdot 10^3 m^{-1}$ e quindi

$$N_2 \simeq 6,43 \cdot 10^{-2} \Phi(0) . \quad (4.7)$$

Lo Styryl 9M ha uno spettro di fluorescenza centrato attorno a 820 nm e quindi, dalla figura 4.3 possiamo estrapolare $k_{ass}(\lambda_{em}) \simeq 10^4 m^{-1}$. La sezione d'urto di emissione non è esplicitamente riportata dai produttori ma da un confronto fra l'efficienza nominale del DCM e quella dello Styryl 9M possiamo stimare $\sigma_{em} \sim 5 \cdot 10^{-21} m^2$.

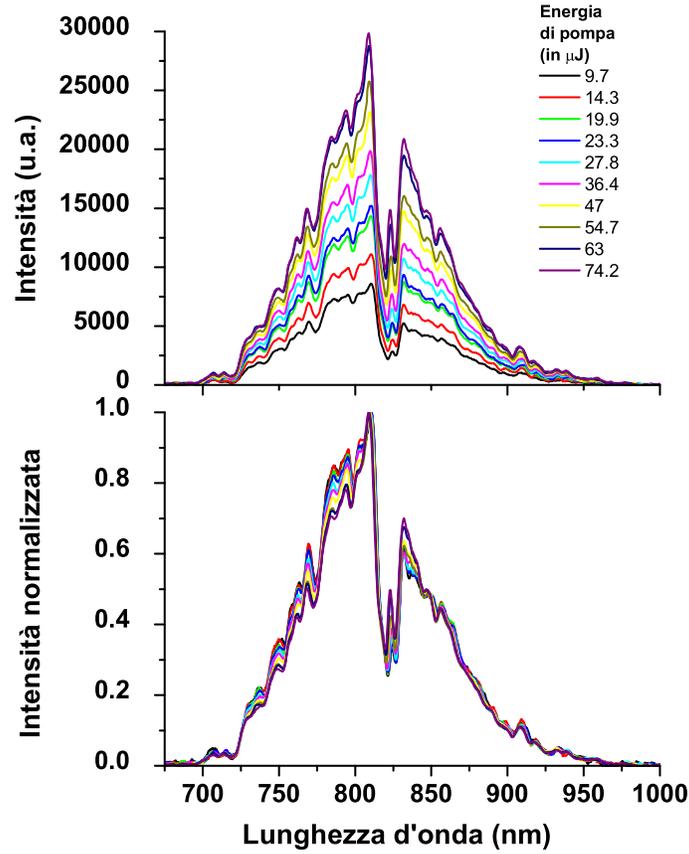


Figura 4.13: *Spettro di emissione di un campione di 300 strati, infiltrato con lo Styryl 9M disciolto nel glicole etilenico con una concentrazione di 2 mmol/l, in funzione dell'energia di pompa.*

Avendo una stima di tutti i parametri coinvolti possiamo riscrivere l'equazione 4.5

$$g = \left(\frac{k_{dye}(\lambda_p)}{k_{sc}(\lambda_p) + k_{ass}(\lambda_p) + k_{dye}(\lambda_p)} \frac{1}{r^2 \pi d} \frac{\lambda_p}{h c} E_p \sigma_{em} \right) - (k_{sc}(\lambda_{em}) + k_{ass}(\lambda_{em})) \quad (4.8)$$

$$\simeq (1,98 \cdot 10^7 E_p - 2 \cdot 10^4) \text{ m}^{-1} .$$

Quindi l'energia di pompa critica che ci darebbe un fattore di guadagno positivo è dell'ordine di 1 *mJ*.

In questo caso il fattore limitante non sarà tanto il numero finito di molecole di colorante presenti nel campione ma la soglia di danneggiamento del glicole etilenico. Come già detto nelle nostre misure abbiamo riscontrato un'energia massima di pompa sostenibile

da questo solvente di circa $90 \mu J$.

Osservando le misure riportate in figura 4.13 possiamo notare come, in questo caso, i vari picchi sembrano comportarsi in modo decisamente diverso fra loro all'aumentare dell'energia di pompa (e quindi al variare di g). In particolare lo stretto picco presente per $\lambda = 823 \text{ nm}$ sembra crescere molto più velocemente degli altri in maniera analoga a quella che avevamo previsto nelle simulazioni numeriche.

Anche se non abbiamo raggiunto la condizione in cui un vero e proprio effetto LASER può aver luogo nel campione (una condizione necessaria perché ciò avvenga è avere $g > 0$) questa è una forte indicazione che sia possibile costruire sistemi che presentino questi effetti. Questa prova sperimentale che sia possibile ottenere comportamenti diversi da picchi diversi al variare del fattore di guadagno elimina il dubbio che possano esistere ragioni fondamentali per cui i sistemi *random-laser 1-D* non debbano funzionare nel modo descritto dalla teoria che abbiamo brevemente tratteggiato in questo capitolo.

Capitolo 5

Conclusioni

In questo lavoro di tesi abbiamo studiato, sia da un punto di vista teorico che da un punto di vista sperimentale, le proprietà degli stati localizzati all'interno di strutture multistrato disordinate 1-D.

Abbiamo ottenuto, tramite il formalismo delle matrici di trasferimento, una formula analitica per ricavare la resistenza adimensionale R (e di conseguenza la lunghezza di localizzazione ξ) in funzione dei parametri costruttivi (per un sistema idealizzato). Abbiamo poi caratterizzato le proprietà di trasmissione e le disomogeneità dei campioni in modo da poter dare una stima sperimentale di ξ che è risultata in buon accordo qualitativo con la previsione teorica.

Tramite un sistema di *optical-gating* abbiamo studiato la risposta temporale dei singoli stati all'interno del sistema mettendone in evidenza le similitudini con le microcavità ed ottenendo una prova sperimentale dell'esistenza degli stati concatenati previsti da J.B. Pendry [14] e, fino ad ora, mai osservati.

Infine abbiamo studiato la possibilità di ottenere un effetto di amplificazione stimolata all'interno dei sistemi disordinati tramite l'introduzione di un guadagno (sotto forma di un colorante laser). Nonostante non si sia osservato un vero e proprio effetto LASER, per via dell'assorbimento all'interno del campione, è stato possibile osservare un evidente effetto di riduzione delle perdite che fanno ben sperare per le future evoluzioni di questo esperimento.

Sviluppi futuri

La teoria che abbiamo sviluppato nel capitolo 1 è valida solo nel caso in cui non ci siano fenomeni di assorbimento o di guadagno. Di conseguenza non è applicabile al caso dell'infiltrazione con i coloranti laser ed allo studio dei processi di emissione coerente da sistemi disordinati. Sarebbe quindi auspicabile una generalizzazione di questa teoria al caso di indici di rifrazione complessi per valutare l'impatto del guadagno e dell'assorbimento sul regime di localizzazione della luce.

Dal punto di vista sperimentale il nodo da sciogliere è dato dalle forti perdite del silicio poroso che rendono difficile l'interpretazione delle misure e che costringono il sistema sotto soglia quando vi inseriamo del guadagno. Per ovviare a questo problema una possibilità è quella di utilizzare un materiale diverso; scegliendo accuratamente il materiale si potrebbero infatti ridurre di diversi ordini di grandezza l'assorbimento nella zona del visibile o del vicinissimo infrarosso e quindi ottenere un fattore di guadagno positivo utilizzando coloranti laser come lo Styryl 9M (il cui uso abbiamo ampiamente discusso nel capitolo 4).

Un percorso alternativo può essere quello di cambiare la sorgente del guadagno: mentre i coloranti laser hanno un'efficienza molto bassa per lunghezze d'onda superiori a circa $1 \mu m$ questo non è necessariamente vero per altri emettitori di luce. Ad esempio nanostrutture come i punti quantici potrebbero fornire una sorgente efficace che può essere infiltrata nei pori delle strutture multistrato. Una forte attrattiva di questo tipo di sistemi è la possibilità teorica di eccitarli elettricamente.

Lo sviluppo di un effetto di tipo laser nei sistemi disordinati aprirebbe la possibilità di creare sorgenti di luce coerente senza l'uso di una cavità risonante e di dimensione micrometrica (e quindi implementabili in strutture quali le fibre ottiche) con un costo decisamente contenuto rispetto alle strutture cresciute per deposizione chimica o addirittura epitassiale.

Dato che l'analogia fra gli stati localizzati all'interno del campione e le microcavità è solo approssimativa le proprietà di emissione di questi sistemi potrebbero differire anche significativamente da quelle dei laser consueti e quindi sono di per sè stesse un argomento interessante da studiare.

Appendice A

L'equazione di Helmotz e quella di Shrödinger.

Partiamo dalle equazioni di Maxwell nella forma

$$\begin{aligned}\vec{\nabla} \cdot \vec{D} &= \rho & \vec{\nabla} \cdot \vec{B} &= 0 \\ \vec{\nabla} \times \vec{E} &= -\frac{\delta \vec{B}}{\delta t} & \vec{\nabla} \times \vec{H} &= \vec{J} + \frac{\delta \vec{D}}{\delta t}\end{aligned}$$

dove

$$\begin{aligned}\vec{D} &= \varepsilon_0 \vec{E} + \vec{P} \\ \vec{H} &= \frac{\vec{B}}{\mu_0} - \vec{M} .\end{aligned}$$

Assumendo che la polarizzabilità del mezzo sia lineare ($\vec{P} = \varepsilon_0 \chi \vec{E}$), omogenea ed isotropa possiamo scrivere:

$$\vec{D} = \varepsilon_0 \vec{E} + \varepsilon_0 \chi \vec{E} = \varepsilon_0 (1 + \chi) \vec{E} = \varepsilon_0 \varepsilon_r \vec{E} = \varepsilon \vec{E} ,$$

facendo poi l'ipotesi che il mezzo sia non ferromagnetico ($\vec{H} = \frac{\vec{B}}{\mu_0 \mu_r} = \frac{\vec{B}}{\mu}$) e che non ci siano cariche libere ($\vec{J} = 0$, ovvero che le uniche correnti presenti siano quelle di

polarizzazione) le equazioni di Maxwell diventano

$$\begin{aligned}\vec{\nabla} \cdot \vec{E} &= \frac{\rho}{\varepsilon} & \vec{\nabla} \cdot \vec{B} &= 0 \\ \vec{\nabla} \times \vec{E} &= -\frac{\delta \vec{B}}{\delta t} & \vec{\nabla} \times \vec{B} &= \varepsilon \mu \frac{\delta \vec{E}}{\delta t}\end{aligned}$$

da cui si ricava

$$\begin{aligned}\frac{\delta}{\delta t}(\vec{\nabla} \times \vec{B}) &= \vec{\nabla} \times \frac{\delta \vec{B}}{\delta t} = \varepsilon \mu \frac{\delta^2 \vec{E}}{\delta t^2} \Rightarrow \\ \Rightarrow \varepsilon \mu \frac{\delta^2 \vec{E}}{\delta t^2} &= \vec{\nabla} \cdot (-\vec{\nabla} \times \vec{E}) = \nabla^2 \vec{E} - \vec{\nabla}(\vec{\nabla} \cdot \vec{E})\end{aligned}$$

che per mezzi elettricamente neutri ($\rho = 0$) e scrivendo $\varepsilon \mu = \left(\frac{n}{c}\right)^2$ si semplifica in:

$$\nabla^2 \vec{E} = \left(\frac{n}{c}\right)^2 \frac{\delta^2 \vec{E}}{\delta t^2}$$

che in una dimensione si legge

$$\frac{\delta^2 E}{\delta x^2} = \left(\frac{n}{c}\right)^2 \frac{\delta^2 E}{\delta t^2} . \quad (\text{A.1})$$

Per ottenere l'equazione di Helmholtz assumiamo che A.1 abbia soluzioni del tipo $E(x, t) = E(x) e^{i\omega t}$ e che l'indice di rifrazione dipenda dalla posizione ottenendo

$$\frac{\delta^2 E}{\delta x^2} + \frac{n^2(x)}{c^2} \omega^2 E(x) = 0 \quad (\text{A.2})$$

che può essere riscritta come

$$\frac{\delta^2 E}{\delta x^2} + \frac{\omega^2}{c^2} E(x) = (1 - n^2(x)) \frac{\omega^2}{c^2} E(x) = V_{eff} E(x) . \quad (\text{A.3})$$

Per vederne il parallelo con l'equazione di Shrödinger stazionaria $\hat{H}\psi = U\psi$ facciamo l'ipotesi (di ampia generalità) di poter riscrivere l'hamiltoniana come $\hat{H} = \frac{\hat{p}^2}{2m} + V$,

dove $\hat{P} = i\hbar\vec{\nabla}$, e che V sia funzione della sola posizione (N.B. questo, ad esempio, non è vero quando si prendono in considerazione gli effetti dello spin). In una dimensione otteniamo

$$\frac{\delta^2\psi(x)}{\delta x^2} + \frac{2mU}{\hbar^2}\psi(x) = \frac{2mV(x)}{\hbar^2}\psi(x) . \quad (\text{A.4})$$

Evidentemente le equazioni A.3 e A.4 hanno la stessa forma e ci aspettiamo che, con condizioni al contorno analoghe, abbiano soluzioni analoghe. C'è però una differenza fondamentale fra le due: mentre $V(x)$ è una funzione a valori in \mathbb{R} , $V_{eff}(x)$ è sempre negativa ($n^2 \geq 1$). Le similitudini fra il caso elettronico e quello fotonico sono quindi limitate ai casi dove l'onda abbia un'energia maggiore del potenziale.

Appendice B

Il formalismo delle matrici di trasferimento

Gran parte dei sistemi 1-D possono essere visti come la sovrapposizione di un certo numero (di solito molto alto) di strati elementari. Se le proprietà (principalmente spessore, indice di rifrazione e coefficiente di assorbimento) di questi strati sono note le matrici di trasferimento offrono un metodo semplice e conveniente di calcolare trasmittanza e riflettanza dell'intero sistema senza introdurre grosse approssimazioni alle equazioni di Maxwell¹.

Facciamo alcune ipotesi non particolarmente restrittive: assumiamo che il materiale di cui sono fatti gli strati sia amagnetico ($\mu = \mu_0$), omogeneo, isotropo e limitiamoci al caso di incidenza normale della luce.

Su ciascuna delle due interfacce che dividono tre strati di indice di rifrazione n_0 , n_1 e n_2 rispettivamente, definiamo i campi entranti ed uscenti (vedi figura B) e scriviamo le condizioni al contorno per il campo elettrico

$$\begin{aligned} E_a &= E_0 + E_{r1} = E_{t1} + E_{i1} \\ E_b &= E_{i2} + E_{r2} = E_{t2} \end{aligned} \tag{B.1}$$

¹La trattazione che verrà fatta in questo capitolo è una generalizzazione al caso di indice di rifrazione complesso della dimostrazione presente nel 22° capitolo del libro *Introduction to Optics* di Pedrotti.

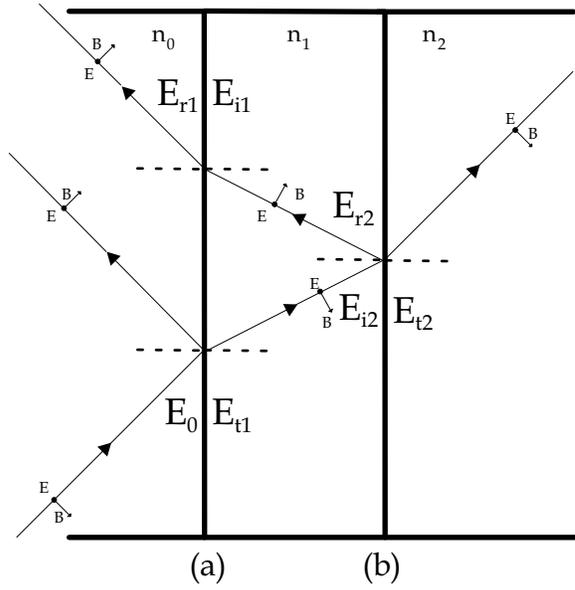


Figura B.1: Schema delle riflessioni e rifrazioni fra due interfacce (a e b). Per semplicità espositiva il raggio di luce è disegnato con un angolo di incidenza diverso da zero. In figura sono anche definite le grandezze usate nel testo.

e magnetico

$$\begin{aligned}
 B_a &= B_0 - B_{r1} = B_{t1} - B_{i1} \\
 B_b &= B_{i2} - B_{r2} = B_{t2} .
 \end{aligned}
 \tag{B.2}$$

Per onde piane propagantesi in un mezzo uniforme l'ampiezza del campo elettrico e di quello magnetico sono legate dalla relazione

$$E = vB
 \tag{B.3}$$

dove v è la velocità della luce nel mezzo e quindi $v = \frac{c}{Re(n)}$. Possiamo quindi riscrivere le condizioni al contorno per il campo magnetico in funzione di E

$$\begin{aligned}
 B_a &= \frac{Re(n_0)}{c} (E_0 - E_{r1}) = \frac{Re(n_1)}{c} (E_{t1} - E_{i1}) \\
 B_b &= \frac{Re(n_1)}{c} (E_{i2} - E_{r2}) = \frac{Re(n_2)}{c} E_{t2} .
 \end{aligned}
 \tag{B.4}$$

Notiamo che il campo uscente a destra della prima interfaccia non è indipendente

da quello entrante a sinistra della seconda, infatti chiamando d lo spessore dello strato e $\delta = 2\pi \frac{n_1}{c} \nu d$ si può scrivere²

$$\begin{aligned} E_{i2} &= E_{t1} e^{i\delta} \\ E_{i1} &= E_{r2} e^{i\delta} \end{aligned} \quad (\text{B.5})$$

e quindi le condizioni al contorno sull'interfaccia diventano

$$\begin{cases} E_a = E_{i2} e^{-i\delta} + E_{r2} e^{i\delta} \\ B_a = \frac{Re(n_1)}{c} (E_{i2} e^{-i\delta} - E_{r2} e^{i\delta}) \end{cases} \quad (\text{B.6})$$

che possono essere risolte simultaneamente per dare

$$\begin{aligned} E_{i2} &= \left(E_a + \frac{c}{Re(n_1)} B_a \right) \frac{e^{i\delta}}{2} \\ E_{r2} &= \left(E_a - \frac{c}{Re(n_1)} B_a \right) \frac{e^{-i\delta}}{2} . \end{aligned} \quad (\text{B.7})$$

Sostituendo le eq. B.7 nelle condizioni al contorno sull'interfaccia b si ottiene quindi

$$E_b = E_{i2} + E_{r2} = E_a \frac{e^{i\delta} + e^{-i\delta}}{2} + B_a \frac{c}{Re(n_1)} \frac{e^{i\delta} - e^{-i\delta}}{2} = \cos \delta E_a + i \frac{c}{Re(n_1)} \sin \delta B_a$$

$$B_b = \frac{Re(n_1)}{c} (E_{i2} - E_{r2}) = \frac{Re(n_1)}{c} E_a \frac{e^{i\delta} - e^{-i\delta}}{2} + B_a \frac{e^{i\delta} + e^{-i\delta}}{2} = i \frac{Re(n_1)}{c} \sin \delta E_a + \cos \delta B_a$$

che possono essere messe nella forma matriciale:

$$\begin{pmatrix} E_b \\ B_b \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \cos \delta & i \frac{c}{Re(n_1)} \sin \delta \\ i \frac{Re(n_1)}{c} \sin \delta & \cos \delta \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_a \\ B_a \end{pmatrix} . \quad (\text{B.8})$$

Questa matrice, che mette in relazione il campo elettromagnetico su un'interfaccia

²Nel caso in cui l'indice di rifrazione sia complesso questi termini tengono conto anche dell'assorbimento o del guadagno.

con quello presente sull'interfaccia immediatamente precedente, è chiamata *matrice di trasferimento*.

Note le matrici di trasferimento \mathcal{M} che mettono in relazione tutte le interfacce adiacenti di un sistema è possibile ricavare il campo presente sull'ultima in funzione di quello sulla prima tramite il prodotto ordinato³ delle \mathcal{M} che chiameremo \mathcal{M}_{tot}

$$\begin{aligned} \begin{pmatrix} E_N \\ B_N \end{pmatrix} &= \mathcal{M}_{N-1} \begin{pmatrix} E_{N-1} \\ B_{N-1} \end{pmatrix} = \mathcal{M}_{N-1} \cdot \mathcal{M}_{N-2} \begin{pmatrix} E_{N-2} \\ B_{N-2} \end{pmatrix} = \mathcal{M}_{N-1} \cdots \mathcal{M}_1 \begin{pmatrix} E_1 \\ B_1 \end{pmatrix} \\ &\Rightarrow \begin{pmatrix} E_N \\ B_N \end{pmatrix} = \mathcal{M}_{tot} \cdot \begin{pmatrix} E_1 \\ B_1 \end{pmatrix}. \end{aligned} \quad (\text{B.9})$$

Ci sono quattro equazioni delle condizioni al contorno che non abbiamo ancora sfruttato

$$\begin{aligned} E_a &= E_0 + E_{r1} & B_a &= \frac{Re(n_0)}{c} (E_0 - E_{r1}) \\ E_b &= E_{t2} & B_b &= \frac{Re(n_2)}{c} E_{t2} \end{aligned} \quad (\text{B.10})$$

sostituendole nell'equazione B.8 si ottiene

$$\begin{aligned} \begin{pmatrix} E_{t2} \\ \frac{Re(n_2)}{c} E_{t2} \end{pmatrix} &= \mathcal{M} \begin{pmatrix} E_0 + E_{r1} \\ \frac{Re(n_0)}{c} (E_0 - E_{r1}) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} m_{1,1} & m_{1,2} \\ m_{2,1} & m_{2,2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_0 + E_{r1} \\ \frac{Re(n_0)}{c} (E_0 - E_{r1}) \end{pmatrix} \Rightarrow \\ &\Rightarrow \begin{cases} E_{t2} = m_{1,1} (E_0 + E_{r1}) + m_{1,2} \frac{Re(n_0)}{c} (E_0 - E_{r1}) \\ \frac{Re(n_2)}{c} E_{t2} = m_{2,1} (E_0 + E_{r1}) + m_{2,2} \frac{Re(n_0)}{c} (E_0 - E_{r1}) \end{cases} \Rightarrow \\ &\Rightarrow \begin{cases} t = m_{1,1} (1 + r) + m_{1,2} \frac{Re(n_0)}{c} (1 - r) \\ \frac{Re(n_2)}{c} t = m_{2,1} (1 + r) + m_{2,2} \frac{Re(n_0)}{c} (1 - r) \end{cases} \end{aligned}$$

avendo definito la trasmittanza $t = \frac{E_{t2}}{E_0}$ e la riflettanza $r = \frac{E_{r1}}{E_0}$.

³Siccome in un sistema composto da N strati ci sono $N + 1$ interfacce il numero delle matrici di trasferimento necessarie a descrivere il sistema è pari al numero di strati.

Questo sistema può essere risolto per r e t ottenendo

$$t = \frac{2 \frac{Re(n_o)}{c}}{\frac{Re(n_2)}{c} m_{1,1} - \frac{Re(n_o)Re(n_2)}{c^2} m_{1,2} - m_{2,1} + \frac{Re(n_o)}{c} m_{2,2}} \quad (\text{B.11})$$

$$r = - \frac{\frac{Re(n_2)}{c} m_{1,1} + \frac{Re(n_o)Re(n_2)}{c^2} m_{1,2} - m_{2,1} - \frac{Re(n_o)}{c} m_{2,2}}{\frac{Re(n_2)}{c} m_{1,1} - \frac{Re(n_o)Re(n_2)}{c^2} m_{1,2} - m_{2,1} + \frac{Re(n_o)}{c} m_{2,2}}$$

dove si è usata l'unitarietà delle matrici di trasferimento ($m_{1,1} m_{2,2} - m_{1,2} m_{2,1} = 1$).

Appendice C

Misura di impulsi corti tramite la generazione di frequenza somma

Un metodo semplice ma con un'ottima risoluzione temporale per la misura di impulsi brevi e periodici è quella dell'*optical-gating* tramite la generazione di frequenza somma.

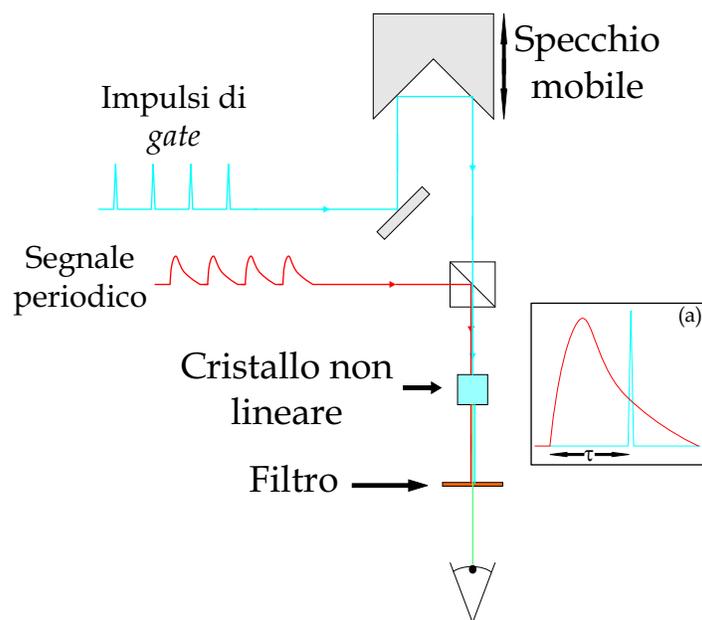


Figura C.1: Diagramma del sistema di misura. Il segnale periodico da misurare è rappresentato in rosso mentre in blu è rappresentato il segnale di "gate". Il cristallo non lineare genera, fra le altre cose, la frequenza somma che viene misurata. Nell'insero (a) viene mostrata la sovrapposizione temporale dei due segnali; τ può essere variata tramite lo specchio mobile.

Ammettendo che il segnale che vogliamo misurare sia della forma

$$E_s(t) \cos(\omega_s t)$$

e di avere a disposizione (ad esempio tramite un laser impulsato) un segnale di *gate*

$$E_g(t + \tau) \cos(\omega_g(t + \tau))$$

dove il ritardo τ è regolabile (vedi la figura C.1) gli effetti del secondo ordine del cristallo non lineare daranno in uscita

$$\begin{aligned}
E_{out} &\propto [E_s(t) \cos(\omega_s t) + E_g(t + \tau) \cos(\omega_g(t + \tau))]^2 \\
&= \left[E_s(t) \frac{e^{i\omega_s t} + e^{-i\omega_s t}}{2} + E_g(t + \tau) \frac{e^{i\omega_g(t+\tau)} + e^{-i\omega_g(t+\tau)}}{2} \right]^2 \\
&= |E_s(t)|^2 + |E_g(t + \tau)|^2 + E_s^2(t) \cos(2\omega_s t) + E_g^2(t + \tau) \cos(2\omega_g(t + \tau)) + \\
&\quad + 2E_s(t)E_g(t + \tau) \cos((\omega_s + \omega_g)t + \omega_g \tau) + \\
&\quad + 2E_s(t)E_g(t + \tau) \cos((\omega_g - \omega_s)t + \omega_g \tau) .
\end{aligned} \tag{C.1}$$

Se selezioniamo soltanto il termine di frequenza somma e ne misuriamo, a τ fissato, l'intensità istantanea otteniamo

$$\begin{aligned}
I_f(t, \tau) &\propto [E_s(t)E_g(t + \tau) \cos((\omega_s + \omega_g)t + \omega_g \tau)]^2 dt = \\
&= E_s^2(t)E_g^2(t + \tau) \cos^2((\omega_s + \omega_g)t + \omega_g \tau) dt = \\
&= I_s(t)I_g(t + \tau) \cos^2((\omega_s + \omega_g)t + \omega_g \tau) dt .
\end{aligned} \tag{C.2}$$

Assumendo di non essere in grado di risolvere le rapide oscillazioni di $I_f(t, \tau)$ (se avessimo avuto a disposizione un sistema di rilevazione capace di discriminare periodi di $\frac{1}{\omega_s + \omega_g} \approx 10$ fs non avremmo avuto bisogno di costruire questo *setup*) ne misureremo

solo l'involuppo, ad esempio con un fotodiode, ottenendo

$$I_f(\tau) \propto \int_{-\infty}^{+\infty} I_s(t) I_g(\tau + t) dt \quad (\text{C.3})$$

che è il prodotto di correlazione fra il segnale che volevamo misurare e quello che abbiamo usato come *gate*.

Ringraziamenti

Arrivato alla conclusione di questo ciclo di studi mi sento di dovere dei ringraziamenti sinceri a tutte le persone che in questi anni mi hanno aiutato e sostenuto.

Vorrei ringraziare il Prof. Marcello Colocci per avermi indirizzato verso la nanofotonica, che si è rivelato essere un argomento di ricerca estremamente interessante e ricco di soddisfazioni.

Vorrei ringraziare Diederik Wiersma per aver sempre creduto nelle mie possibilità (forse più di quanto non ci credessi io stesso) e per non avermi mai chiesto la mia media di libretto.

Vorrei ringraziare Stefano Gottardo per l'infinita pazienza dimostrata durante tutto il periodo della mia tesi.

Fra i miei compagni di università un ringraziamento speciale va a Vanni Nardino, Antonio Mirto, Agnese Cartocci, David Dolci ed Ingunn Lovik per aver diviso con me le pene degli esami; senza di voi non sarei mai arrivato vivo alla meta.

Ringrazio anche Andrea Puggelli, Luca Simone Giovanni Betti e Gianmarco Deotto che, con la loro simpatia, hanno reso un po' più sopportabili ed un po' meno tediosi questi lunghi anni di università .

Vorrei ringraziare con tutto il cuore i miei genitori, che mi hanno sempre sostenuto e sono sempre stati presenti anche quando ci sono stati dei momenti difficili, e mio fratello per non aver mai remato contro.

Ma più di tutti vorrei ringraziare Agnieszka per aver dato uno scopo alla mia vita e per aver accettato di dividerla con me.

Bibliografia

- [1] Euclide, *Optica* (300 a.c. circa).
- [2] Francesco Maria Grimaldi, *Physico-Mathesis de lumine, coloribus et iride* (1665).
- [3] Albert Einstein, *Annalen der Physik* vol. **17** (1905) e *Annalen der Physik* vol. **20** (1906).
- [4] vedi ad esempio: P. Sheng, *Introduction to Wave Scattering, Localization, and Mesoscopic Phenomena* (Academic Press, San Diego, 1995).
- [5] Y. Kuga, A. Ishimaru, *Retroreflectance from a dense distribution of spherical particles*, *JOSA A* vol.1 issue **8** (1984);
M.P. van Albada, Ad Lagendijk, *Observation of weak localization of light in a random medium*, *Physical Review Letters* vol.**55** n.**24** (1985);
P. Wolf, G. Maret, *Weak localization and coherent backscattering of photons in disordered media*, *Physical Review Letters* vol.**55** n.**24** (1985);
D.S. Wiersma, M.P. van Albada, B.A. van Tiggelen, Ad Lagendijk, *Experimental evidence for recurrent multiple scattering events of light in disordered media*, *Physical Review Letters* vol.**74** n.**21** (1995).
- [6] P.W. Anderson, *Absence of diffusion in certain random lattices*, *Physical Review* vol.**109** n.**5** (1958).
- [7] P.W. Anderson, *Local moments and localized states*, Nobel Lectures, (1997).
- [8] D.E. Khmel'nitskii, *Localization and coherent scattering of electrons*, *Physica B* vol.**126** (1984);
P.A. Lee, T.V. Ramakrishnan, *Disordered electronic systems*, *Review of Modern Physics* vol.**57** (1985);

- T. Ando, H. Fukujama, *Anderson localization*, Springer proceedings in physics vol.**28** (Springer, Berlin, 1988);
- D. Vollhart, P. Wölfle, in *Electronic phase transition* (Elsevier, Amsterdam, 1992).
- [9] S. John, *Electromagnetic absorption in a disordered medium near a photon mobility edge*, Physical Review Letters vol.**53** n.**22** (1984);
- P.W. Anderson, *The question of classical localization. A theory of white paint?*, Philos. Mag. B vol.**52** (1985);
- K. Arya, Z.B. Su, J.L. Birman, *Anderson localization of electromagnetic waves in a dielectric medium of randomly distributed metal particles*, Physical Review Letters vol.**57** (1986);
- Ad Lagendijk, M.P. van Albada, M.B. van der Mark, *Localization of light: the quest for the white hole*, Physica A vol.**140** (1986);
- M. Kohmoto, B. Sutherland, K. Iguchi, *Localization in optics: quasiperiodic media*, Physical Review Letters vol.**58** n.**23** (1987);
- C.M. Soukoulis, E.N. Economou, G.S. Grest, M.H. Cohen, *Existence of Anderson localization of classical waves in a random two-component medium*, Physical Review Letters vol.**62** (1989);
- Rachida Dalichaouch, J. P. Armstrong, S. Schultz, P. M. Platzman, S.L. McCall, *Microwave localization by two-dimensional random scattering*, Nature **354** (1991);
- A.Z. Genack and N. Garcia, *Observation of photon localization in a three-dimensional disordered system*, Physical Review Letters **66** (1991);
- N. Garcia, A.Z. Genack, *Anomalous photon diffusion at the threshold of the Anderson localization transition*, Physical Review Letters vol.**66** (1991);
- D.S. Wiersma, P. Bartolini, Ad Lagendijk e R. Righini, *Localization of light in a disordered medium*, Nature **390** (1997);
- A.Z. Genack, P. Sebbah, M. Stoytchev, B.A. van Tiggelen, *Statistics of wave dynamics in random media*, Physical Review Letters vol.**84** n.**4** (1999);
- A. A. Chabanov, M. Stoytchev e A. Z. Genack, *Statistical signatures of photon localization*, Nature **404** (2000);
- B.A. van Tiggelen, Ad Lagendijk, D.S. Wiersma, *Reflection and transmission of waves near the localization threshold*, Physical Review Letters vol.**84** n.**19** (2000);
- F.A. Pinheiro, M. Rusek, A. Orłowski, B.A. Tiggelen, *Probing Anderson*

- localization of light via decay rate statistics*, Physical Review E vol.**69** (2004).
- [10] G.L. Rikken e B.A. van Tiggelen, *Observation of magnetically induced transverse diffusion of light*, Nature **381** 54 (1997).
- [11] vedi ad esempio: John D. Joannopoulos, Robert D. Meade e Joshua N. Winn, *Photonic Crystals - Molding the flow of light* (Princeton university press, Princeton, 1995).
- [12] Riccardo Sapienza *et al.*, *Optical Analogue of Electronic Bloch Oscillations*, Physical Review Letters vol.**91** n.**26** (2003).
- [13] S. Feng, C. Kane, P.A. Lee, A.D. Stone, *Correlations and fluctuations of coherent wave transmission through disordered media*, Physical Review Letters vol.**61** n.**7** (1988);
K.M. Slevin, J.B. Pendry, *Log-normal distribution as a description of fluctuation in one-dimensional systems*, Physical Review B vol.**41** n.**14** (1990).
- [14] J.B. Pendry, *Symmetry and transport of waves in one-dimensional disordered systems*, Advances in Physics vol.**43** n.**4** (1994).
- [15] O. Bisi, S. Ossicini e L. Pavesi, *Porous silicon: a quantum sponge structure for silicon based optoelectronics*, Surface Science Report n.**38** (2000).
- [16] <http://www.oceanoptics.com/products/ls1.asp>
- [17] http://www.brukeroptics.com/products/spectrographs_monochromators.html
- [18] <http://www.hamamatsu.it>
- [19] R.H.J. Kop, P. de Vries, R. Sprik, Ad Lagendijk, *Observation of anomalous transport of strongly multiple scattered light in thick disordered slabs*, Physical Review Letters vol.**79** n.**22** (1997);
P.M. Johnson, A. Imhof, B.P.J. Bret, J.G. Rivas, Ad Lagendijk, *Time-resolved pulse propagation in a strongly scattering material*, Physical Review E vol.**68** (2003).
- [20] http://www.spectraphysics.com/products/cld_products/beamlok_2080.html

- [21] http://www.spectraphysics.com/products/isl_products/tsunami.html
- [22] http://www.spectraphysics.com/products/isl_products/opal.html
- [23] <http://www.udt.com/pdf/Photops.pdf>
- [24] http://shop.mellesgriot.com/products/optics/dept.asp?TD=Y&plga=158632&dept_id=10
- [25] vedi ad esempio: O. Svelto, *Principles of Lasers* (Plenum Press, New York, 1998).
- [26] V.S. Letokhov, *Generation of light by a scattering medium with negative resonance absorption*, Zh. Èksp. Teor. Fiz. **53**, 1442 (1967) [Sov. Phys. JETP vol.**26**, 835 (1968)];
 N.M. Lawandy, R.M. Balachandran, A.S.L. Gomes, E. Sauvin, *Laser action in strongly scattering media*, Nature **368** (1994);
 S. John, G. Pang, *Theory of lasing in a multiple-scattering medium*, Physical Review A vol.**54** n.4 (1996);
 D.S. Wiersma, Ad Lagendijk, *Light diffusion with gain and random lasers*, Physical Review E vol.**54** n.4 (1996);
 C.W.J. Beenakker, *Thermal radiation and amplified spontaneous emission from a random medium*, Physical Review Letters vol.**81** n.9 (1998);
 X. Jiang, C.M. Soukoulis, *Time dependent theory for random lasers*, Physical Review Letters vol.**85** n.1 (2000);
 G. van Soest, Ad lagendijk, *β factor in a random laser*, Physical Review E vol.**65** (2002);
 D.S. Wiersma, S. Cavalieri, *Temperature-controlled random laser action in liquid crystal infiltrated systems*, Physical Review E vol.**66** (2002).
- [27] <http://www.exciton.com/catalogmain.htm>
- [28] <http://www.micronosi.com/detector.htm>
- [29] Stefano Gottardo, Stefano Cavalieri, Oleg Yaroshchuk e Diederik S. Wiersma, *Quasi Two-Dimensional Random Laser Action, non pubblicato.*
- [30] <http://www.oceanoptics.com/products/usb2000.asp>