

## DIPARTIMENTO DI FISICA

Corso di Laurea Triennale in Fisica

# "Pump and Probe ottico" in YBCO in fase superconductiva

Candidato: Francesco Borsoi

Relatore: Dr. Daniele Fausti Correlatori: Prof. Fulvio Parmigiani Dr. Martina Esposito

Anno Accademico 2013/2014

## Contents

1	Intr	roduzione	1
<b>2</b>	Bac	Back-ground teorico	
	2.1	Dinamiche elettroniche nei superconduttori	3
	2.2	Tecnica Pump and Probe	7
	2.3	Rothwarf-Taylor equations	8
	2.4	Eccitazione di stati coerenti vibrazionali	10
3	Ар	parato sperimentale	<b>14</b>
	3.1	Sorgente Laser	14
		3.1.1 Mode locking	14
		3.1.2 Chirped pulse amplification	16
	3.2	Descrizione del setup ottico	17
	3.3	Sistemi di acquisizione	21
		3.3.1 Acquisizione Lock-in	21
		3.3.2 Digitalizer	24
	3.4	Descrizione del campione	25
4	Ris	ultati e discussione	<b>27</b>
	4.1	Trasmissione da film sottile	27
	4.2	Misure di $Pump$ and $Probe$ in funzione di temperatura e energia di pompa	28
	4.3	Analisi	31
	4.4	"Coherent Phonons"	34
	4.5	Misure tramite photodetector differenziale	38
5	Cor	nclusioni	40

## 1 Introduzione

Negli ultimi anni, materiali superconduttori ad alta temperatura critica hanno acquistato grande interesse dal punto di vista fisico e tecnologico. La famiglia di campioni più studiata e sorprendente è quella degli ossidi di rame. Alcuni composti di tale famiglia mantengono le proprietà superconduttive fino a temperature che raggiungono i 150 °C. Il composto studiato in questa tesi,  $YBa_2Cu_3O_{6,9}$ , appartiene a tale famiglia e risulta essere un pessimo conduttore a temperatura ambiente e superconduttore per temperature minori di 88/90 K. Le sue proprietà furono scoperte nel 1986, immediatamente dopo quelle del composto  $La_{1,85}BaCuO_4$ , capostipite del nutrito gruppo di 'osservati speciali'. Ad oggi, non esiste una teoria completa che descriva tali spettacolari proprietà che costituiscono un enigma inspiegato dalla teoria standard della Superconduttività.

Le dinamiche all'interno di questi materiali non sono tuttora chiarite da alcun modello in modo soddisfacente. Uno degli approcci sperimentali emergenti più interessanti consiste nell'analisi delle proprietà ottiche al di fuori dell'equilibrio, con cui è possibile eccitare selettivamente i gradi del sistema e distinguerne i tempi di risposta caratteristici. La risposta alla fotoeccitazione di un sistema contiene, dunque, informazioni relative a diversi meccanismi di rilassamento tra cui l'interazione dei gradi di libertà elettronici con l'ordinamento degli atomi nel reticolo. Fra i modi con cui si approccia alle proprietà di riflettività e trasmittività fuori equilibrio ritroviamo la tecnica *Pump and Probe*.

Uno dei meriti più interessanti di questo metodo è che si può ottenere una descrizione timeresolved di parametri ottici con risoluzione temporale dell'ordine dei femtosecondi in situazioni di non-equilibrio per il campione. Questa tecnica assume importanza rilevante nello studio di materiali come quello in esame ove le dinamiche elettroniche ultraveloci a basse temperature sono intrinsicamente legate ai modi normali vibrazionali nel materiale.

Nell'esperimento di cui si tratta in questa tesi, si focalizza l'attenzione sulla variazione di trasmittività che subisce un film sottile di  $YBa_2Cu_3O_{6,9}$  conseguente ad una forte eccitazione luminosa. Quest'ultima è indotta da un impulso ultracorto di luce laser quasi-monocromatica trasferito ogni  $4 \mu s$  da un fascio di pompa (*Pump*). L'impulso porta fuori equilibrio i gradi di libertà elettronici che si ripercuotono sulla dinamica delle proprietà ottiche misurate. La variazione della trasmittività indotta dalla fotoeccitazione in tale intervallo non è maggiore dello 0,5%, ma contiene diverse informazioni sui modi vibrazionali stimolati all'interno del reticolo, sulle dinamiche di rilassamento di fononi ad alta frequenza e sui tempi caratteristici di ricostituzione della fase superconduttiva. Per misurare la trasmittività, si utilizza un secondo fascio impulsato (*Probe*), alla stessa lunghezza d'onda del *Pump*, che ha il compito di sondare il campione ad un ritardo relativo rispetto alla radiazione di pompa variabile con continuità.

In questa tesi, verifichiamo, inoltre, la consistenza di un modello fenomenologico basato sulle

Rothwarf-Taylor Equations capace di descrivere le complicate dinamiche esistenti fra gradi di libertà elettronici e vibrazionali in fase superconduttiva utilizzando il formalismo della teoria BCS, teoria standard della superconduttività elaborata nel 1957 da Bardeen, Cooper e Schrieffer. Infine, determiniamo le frequenze di modi fononici eccitati nel campione valutandone la dipendenza dalla temperatura e dalla fase superconduttiva.

## 2 Back-ground teorico

#### 2.1 Dinamiche elettroniche nei superconduttori

L'interesse nell'ambito dei superconduttori da parte della comunità scientifica mondiale ha subito fasi altalenanti negli ultimi cent'anni, in cui brevi periodi di grande sviluppo e di euforia si alternavano ad anni di latenza nell'analisi teorica.

Il termine "superconduttività" entrò prepotentemente nella storia della fisica solo nel 1911, quando l'olandese Kamerlingh Onnes notò sperimentalmente che la resistenza del mercurio al passaggio di corrente a 4,2 K diminuiva, in un intervallo  $\Delta T = 0,01 K$ , di diversi ordini di grandezza, fino a non essere più misurabile. Da quell'anno, molti altri metalli furono sottoposti ad analisi dettagliate e, per ciascuno, si osservò una vera e propria transizione tra fase conduttiva e fase superconduttiva. Con quest'ultimo termine, si vuole intendere lo stato fisico del sistema con resistività nulla in condizioni di assenza di campi esterni e in presenza di corrente inferiore ad un limite massimo. Onnes ed il suo gruppo continuarono lo studio di metalli e di leghe con temperature critiche sempre più alte scoprendo che il Niobio è l'elemento con  $T_c$  massima nella tavola periodica (9, 25 K), seguito dal Piombo (7, 19 K). Negli anni Cinquanta, furono presi in considerazione anche composti binari e l'asticella si alzò ancora grazie alle misure sulla lega di  $Nb_3Ge$  (23, 3 K) [1].

L'interpretazione teorica della superconduttività di metalli elementari e composti binari fu nota molto più tardi; si dovette attendere il 1957, anno in cui Bardeen, Cooper e Schrieffer pubblicarono, con grande successo, quella che è nota al mondo come *Theory of Superconductivity*, chiamata in loro onore anche con l'acronimo "*BCS Theory*" [2].

Secondo la BCS, un insieme di elettroni presenti in un metallo a  $T \simeq 0 K$  può essere interpretato come un sistema di fermioni liberi occupante una sfera nello spazio delle fasi che manifestano, in alcune condizioni estreme, un'interazione attrattiva a due corpi mediata da fononi. Questo termine rappresenta il potenziale responsabile della formazione di coppie bosoniche elettroneelettrone portatrici di carica altamente "correlate", note come "coppie di Cooper" [3]. Esse costituiscono, a temperature molto basse, dei sistemi legati ad un'energia inferiore a quella di Fermi e sono, dunque, degli stati spontaneamente accessibili dagli elettroni. La correlazione presente fra le cariche elementari distingue la fase superconduttiva da quella metallica. Il meccanismo di *pairing* giustifica anche il gap energetico presente nello spettro dei materiali in fase superconduttiva e il pefetto diamagnetismo per il quale un campo magnetico, sotto un certo valore critico, non riesce a penetrare all'interno del metallo (effetto Meissner). Quest'effetto può essere spiegato in modu semiclassico dal fatto che le correnti di superficie producono nel volume un campo uguale in modulo e in direzione, ma in verso opposto, ottenendo così un campo magnetico nullo (B = 0), all'interno del superconduttore. In questa descrizione, un campo molto forte a  $T < T_c$  può provocare comunque la rottura della fase superconduttiva. Quest'analisi permette di discriminare due classi di superconduttori:

#### superconduttori del I tipo:

ad una temperatura T, applicando un campo  $H < H_c(T)$ , il solido mantiene la capacità di espellere il flusso di campo dal suo interno. Con un campo esterno il cui modulo è superiore al valore critico alla fissata temperatura, invece, si riesce a inibire la fase superconduttiva, come illustra il grafico. La relazione che lega il valor critico del campo alla temperatura è:

$$H_c(T) = H_c(0) \cdot \left(1 - \frac{T^2}{T_c^2}\right)$$



Figure 2.1: Diagramma di fase per superconduttori del I tipo [3].

#### superconduttori del II tipo:

questi materiali sono caratterizzati dal fatto che per  $H < H_{c_1}(T)$ , il flusso non riesce a penetrare nel bulk. A valori intermedi  $H_{c_2}(T) > H > H_{c_1}(T)$ , il campo riesce a penetrare parzialmente sotto forma di filamenti inducendo la cosidetta fase di Shubnikov.



Figure 2.2: Diagramma di fase per superconduttori del II tipo [3].

Nella fase superconduttiva, l'interazione attrattiva elettrone-elettrone provoca la formazione di un ground-state separato dagli stati eccitati per una certa  $E_{gap}$ .

Possiamo immaginare l'interazione indiretta tra il reticolo e due fermioni di spin opposto con vettori d'onda  $\vec{k}$  e  $-\vec{k}$  ad energie prossime a quella di Fermi in questo modo. Uno dei due elettroni interagisce con il reticolo cristallino producendone una polarizzazione ed una deformazione che viene risentita dal secondo. Quest'ultimo tende a minimizzare la sua energia potenziale dirigendosi verso zone con addensamento di carica positiva e, se, dopo una serie di eventi di scattering, l'energia del primo elettrone soddisfa la relazione  $E_1 > E_F$  e quella del secondo verifica  $E_2 < E_F + \hbar \omega_{Debye}$ , può essere operativo il meccanismo di accoppiamento tramite la creazione e l'assorbimento di un fonone con momento  $\hbar \vec{q}$ . La figura sottostante schematizza l'interazione:



Figure 2.3: (a) Rappresentazione di una coppia di Cooper aggiunta al ground state di un gas di elettroni liberi e (b) diagramma di Feynman descrivente lo scattering di due elettroni definiti dai vettori d'onda iniziali  $\vec{k} = -\vec{k}$ verso lo stato finale  $\vec{k'} = -\vec{k'}$  con emissione e assorbimento di un fonone di momento  $\hbar \vec{q}$  [3].

La teoria BCS valse il Nobel nel 1972 a Bardeen, Cooper e Schriffer che, per primi, riuscirono a sviluppare una teoria in grado di descrivere la superconduttività per metalli elementari. Grazie a questa, essi calcolarono che, al di sopra di 20 - 30 K, il meccanismo di accoppiamento non può avvenire. Questa constatazione pose, per anni, un netto limite agli sviluppi tecnologici dei materiali in questione che si rivelavano di difficile studio e utilizzo pratico.

Una nuova ventata di entusiasmo seguì la scoperta sperimentale realizzata nel 1986, quando i fisici Bednorz e Müller, studiando e sintetizzando composti di perovskite e di ossidi di rame, vollero indagarne le proprietà a bassissime temperature. Il primo materiale che aprì la strada verso i superconduttori ad alta temperatura critica  $(high - T_c)$  fu il composto  $La_2CuO_4$  [4].

Come gli altri cristalli a base di ossidi di rame, esso presenta una struttura in cui si alternano layers metallici di  $CuO_2$  e piani isolanti che, nello specifico caso, sono costituiti da due strati di LaO. In questi cristalli, i piani compresi fra quelli conduttori fungono da riserve di cariche mobili per gli strati conduttivi. Con un opportuna sostituzione di  $La^{3+}$  con delle impurezze di  $Sr^{2+}$ o  $Ba^{2+}$ , nei composti  $La_{2-\delta}SrCuO_4$  e  $La_{2-\delta}BaCuO_4$ , meno elettroni sono donati ai piani rameici rispetto al composto non dopato, favorendo la formazione di lacune mobili (*holes*) negli orbitali ibridi dell'ossigeno. Bednorz e Muller, con dopaggi ottimali ( $\delta \sim 0, 15$ ), misurarono  $T_c$ di circa 38 K.



Figure 2.4: Struttura cristallina di  $LaCuO_4$ , composto che, dopato in modo opportuno, aprì la strada dei materiali superconduttori ad alta temperatura nel 1986 [3].

Queste specie aprirono la strada ad altri composti rameici (gergalmente chiamati *Cuprates*) basati su Ittrio, Bismuto, Tallio e Mercurio che presentano la fase di superconduttività fino a temperature critiche comprese tra 70 e 100 K. Bednorz e Müller avevano inaugurato l'era dei superconduttori ad alta temperatura critica  $(HT_cSC)$ .

La corsa a superconduttori ad alta temperatura critica non si esaurisce con i *Cuprates* visto che, in tempi più recenti (1991), si notarono le ampie potenzialità del fullerene, nome che indica il reticolo a *Face-Centred-Cubic* di 60 atomi di *C*. Inserendo in tre siti un metallo alcalino donatore di elettroni come il potassio, si può ottenere la macro-molecola  $K_3C_{60}$  dotata di cariche negative libere nell'orbitale molecolare *LUMO*. Tramite questo dopaggio, il composto diventa superconduttore al di sotto di 18 K [14].

Nel 2001, a testimonianza di quanto fermento è tuttora presente in quest'ambito, venne misurata nel composto  $MgB_2$  la più alta  $T_c$  (40 K) per un sale binario e nel 2008 si scoprì la superconduttività ad alta temperatura critica anche per una nuova classe di camposti  $LaO_{1-\delta}F_xFeAs$ (50 K) [13].

Discuteremo, nelle seguenti sottosezioni, della tecnica spettroscopica time-resolved più applicata

nello studio di proprietà ottiche in condizioni di non-equilibrio per il superconduttore in analisi. Al fine di interpretare i dati raccolti con questa tecnica, tratteremo il modello teorico semplificativo basato sulle *Rothwarf-Taylor equations*, particolarmente adatto nel caso in cui il campione venga stimolato tramite fotoeccitazione.

#### 2.2 Tecnica Pump and Probe

La tecnica *Pump and Probe* permette l'analisi di proprietà ottiche che evolvono nel tempo con una grande risoluzione.

In questo lavoro, la grandezza studiata è la variazione di trasmittività (T) di un film superconduttore in un arco temporale di circa 7 ps. L'equilibrio del reticolo di  $YBa_2Cu_3O_{6,9}$  è perturbato da un impulso di luce molto intenso e ultracorto della durata di circa 80 fs (Pump). La fotoeccitazione interagisce in modo distruttivo con le coppie di Cooper presenti in fase superconduttiva e genera, in secondo luogo, vibrazioni coerenti nei modi normali. L'acquizione del segnale  $\Delta T/T$ consente di analizzare dunque i modi vibrazionali e i tempi di formazione di nuove coppie. Questo è possibile grazie ad un secondo impulso ultracorto e meno intenso (Probe) che sonda la trasmittività senza interferire con le dinamiche interne.

La regolazione minima del *time-delay* fra l'arrivo di *Pump* e *Probe* determina la risoluzione temporale della misura. Nel nostro caso, il ritardo temporale di arrivo fra i due fasci è regolato dal movimento rettilineo di un traslatore meccanico, recante due specchi, posto lungo il percorso del fascio di *Pump*.

Per poter interpretare al meglio le curve di risposta come quelle che presenteremo si ritiene opportuno fare una precisazione preliminare.

Il time-delay è ottenuto tramite una parametrizzazione della differenza di cammino ottico tra il fascio di *Pump* e quello di *Probe*. Definendo con x la generica coordinata del traslatore lungo un asse localizzato sul banco ottico e con  $x_0$  la posizione che garantisce la coincidenza temporale di arrivo dei due impulsi ( $l_{Pump} = l_{Probe}$ ), il time-delay dovuto dal posizionamento in x è dato dalla formula:

$$t = -\frac{2}{c} \cdot (x - x_o)$$

Poichè l'intervallo temporale interessante è di circa 8 ps, il movimento totale del traslatore è poco più ampio di 1 mm.

Terminata una scansione, un software, realizzato in LabView, riporta il traslatore alla posizione iniziale e ne viene avviata una seconda. Di norma, le curve che presenteremo fanno riferimento alla media di una decina di scansioni.

#### 2.3 Rothwarf-Taylor equations

Le Rothwarf-Taylor equations costituiscono un semplice modello fenomenologico capace di descrivere le dinamiche fotoindotte in materiali superconduttori (SC) in condizioni di non-equilibrio. Esse hanno riscontrato successo nella comunità scientifica sia negli anni '60, quando vennero effettuati i primi esperimenti in merito alla vita media di Quasi-Particelle<sup>1</sup> (QPs), sia ai giorni d'oggi in cui si dimostrano valide anche per misure di dinamiche ultraveloci su ossidi di rame tramite esperimenti di Pump and Probe (P&P).

Il modello prevede che, all'interno del materiale SC, vi sia un equilibrio dinamico fra due processi:

- il meccanismo di formazione di coppie di Cooper tramite due Quasi-Particelle con energia superiore a Δ (gap superconduttivo) con la conseguente emissione di un fonone di energia maggiore di 2Δ;
- la rottura delle coppie presenti provocata dagli stessi fononi ad alta frequenza (HFP).

Il recupero della fase superconduttiva è governato, quindi, da due meccanismi cha vanno uno in direzione opposta dell'altro. Il materiale necessita di un transiente di tempo per riportarsi nella fase superconduttiva nella quale si trovava prima della sollecitazione; in questo *decay-time*, i fononi dissipano parte della loro energia in modo anaelastico perdendo la capacità di rompere ulteriori coppie di Cooper [5] [6].

All'interno delle RT equations compaiono le seguenti quantità:

- $n \in N$ : le concentrazioni rispettive di QPs e HFPs nel materiale;
- $\eta$ : la probabilità di rottura di una coppia tramite assorbimento di HFPs;
- R: la probabilità di emissione di HFPs per due QPs che si ricombinano;
- $N_T \in \gamma$ : la concentrazione di HFPs all'equilibrio alla temperatura T e la loro probabilità di decadimento dovuta a fenomenti anaelastici e alla loro diffusione nel substrato;
- $I_0 \in J_0$ : le sorgenti esterne di QPs e di HFPs.

L'equilibrio fra coppie di Cooper e fononi è riassumibile dalle due seguenti equazioni differenziali che prendono il nome di *Rothwarf-Taylor equations*:

$$\begin{cases} \frac{dn}{dt} = I_0 + \eta N - Rn^2 \\ \frac{dN}{dt} = J_0 - \frac{\eta N}{2} + \frac{Rn^2}{2} - \gamma (N - N_T) \end{cases}$$

Si assume, in accordo con lavori precedenti [6][18], che il segnale di risposta del materiale superconduttore (SCS), analizzato in termini di  $\Delta T/T$ , sia proporzionale alla quantità n(t). Risulta

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup>Con il termine "Quasi-Particella" si intende, in questo ambito, un elettrone non accoppiato.

più semplice ora definire le seguenti grandezze che permettono una riformulazione adimensionale delle *Rothwarf-Taylor equations:* 

$$\begin{cases} q = \frac{Rn}{\eta} \\ p = \frac{RN}{\eta} \\ \theta = \eta t \\ \tilde{\gamma} = \frac{\gamma}{\eta} \end{cases}$$
$$\begin{cases} \frac{dq}{d\theta} = p - q^2 \\ \frac{dp}{d\theta} = -\frac{p}{2} + \frac{q^2}{2} - \tilde{\gamma}(p - p_T) \end{cases}$$

La fotoeccitazione indotta dalla Pompa al tempo t = 0 può essere interpretata come una funzione Delta di Dirac  $\delta(t)$ , poichè i tempi caratteristici di risposta del sistema sono di qualche ordine di grandezza più lunghi della durata dell'impulso di pompa. Questo induce a porre le seguenti condizioni iniziali:

$$\begin{cases} q(0) = q_0 = \frac{Rn_0}{\eta} \\ p(0) = p_0 = \frac{RN_0}{\eta} \end{cases}$$

In condizioni stazionarie, deve essere soddisfatta la relazione d'equilibrio termico fra Quasi-Particelle e Fononi ad Alta Frequenza:

$$p_T = q_T^2$$

Poichè la densità fononica in un reticolo con  $\nu$  atomi per cella è  $D(\omega) = \frac{9\nu\omega^2}{\omega_D^2}$ , si può calcolare che la concentrazione di fononi termici è  $N_T = \frac{36\nu\Delta^2 T}{\omega_D^2} e^{-\frac{2\Delta}{k_b T}}$  e che quella delle QPs è  $n_T \simeq N(0)\sqrt{2\pi\Delta k_B T}e^{-\Delta/T}$ , dove N(0) indica la densità elettronica di stati per cella unitaria. Da questi risultati, è possibile determinare il rapporto fra le due probabilità  $\eta/R = n_T^2/N_T = \frac{N(0)^2 \pi \omega_D^2}{18\nu\Delta}$  e definire qual è la temperatura  $\tilde{T}$  alla quale la concentrazione delle QPs è unitaria:  $\tilde{T} \simeq \Delta/ln(\frac{\Delta^2 \nu E_F}{\omega_D^3})$ .

I dettagli della risoluzione e dell'analisi delle RTE prescindono dallo scopo di questa tesi. Diamo di seguito delle considerazioni che permettono meglio di avvicendare il modello teorico ai nostri risultati sperimentali. Per i composti come quello che presentiamo, la quantità  $\tilde{\gamma}$  risulta essere molto piccola ( $\ll 1$ ) e possiamo fare alcune approssimazioni che permettono di individuare due momenti distinti nel recupero della fase superconduttiva:

• pre-bottleneck dynamics: in cui si assiste all'evoluzione molto rapida ( $\tau_1 \ll 1/\tilde{\gamma}$ ) delle concentrazioni di Quasi-particelle e di Fononi ad Alta Frequenza;

• *superconducting state recovery dynamics*: durante le quali, i fononi dissipano la loro energia per effetti anaelastici.

Le soluzioni a questo sistema di equazioni differenziali possono essere trovate in modo analitico in alcuni casi limite o, più in generale, in modo numerico. In figura, è possibile confrontare le soluzioni  $q(\theta) e p(\theta)$  al variare delle condizioni iniziali per particolari  $\tilde{\gamma}$ :



Figure 2.5: Soluzioni analitiche delle Rothwarf-Taylor equations confrontate con le soluzioni numeriche in diversi casi a T = 0 K. I grafici in (a) e (b) mostrano il limite di strong bottleneck ( $\tilde{\gamma} = 0.1$ ) con differenti condizioni iniziali, quello in (c) invece il caso di weak bottleneck ( $\tilde{\gamma} = 10$ ). Nell'inserto del piano (a), si illustra l'andamento della densità di QPs indotte in funzione di  $\theta$  per differenti valori di  $q_T$ . A 0 K, l'andamento è lineare, a termperature superiori esso assume la forma esponenziale [5].

Il recupero della fase superconduttiva nel  $YBa_2Cu_3O_{6,9}$  è dominato dalla seconda fase descritta, in cui si manifesta il decadimento anaelastico di fononi nel *bulk*; nella nostra analisi vedremo, infatti, che la prima fase ha una durata inferiore a 1 *ps*, mentre la seconda un intervallo di circa 4 *ps*. Per questo motivo, si è scelto di interpolare le curve di  $\Delta T/T$  in funzione del tempo con un unico esponenziale crescente, in cui il *decay-time*  $\tau$  dipende sia dall'intensità dell'eccitazione sia dalla temperatura.

#### 2.4 Eccitazione di stati coerenti vibrazionali

Analizziamo ora, con dei modelli fenomenologici, l'interazione luce-materia e l'eccitazione di vibrazioni di modi normali all'interno del reticolo di  $YBa_2Cu_3O_{6,9}$ . A questo fine, riprendiamo per chiarezza alcuni concetti utili.

#### Oscillatore armonico quantistico e stati coerenti

Utilizziamo ora il formalismo dell'oscillatore armonico quantistico per la descrizione del campo elastico del materiale. E' noto che gli autostati  $|n\rangle$  dell'operatore numero  $\hat{N}$ , evolvendo nel tempo tramite la fase  $e^{-\frac{iE_nt}{\hbar}}$ , hanno sempre valore d'aspettazione della coordinata canonica normale indipendente da t e, nello specifico, si può calcolare che il valor medio della coordinata di posizione è sempre  $\langle \hat{q} \rangle_{|n\rangle} = 0$ . Lo stato  $|n\rangle$  caratterizza un oscillatore con una posizione mediamente nulla ed un'energia ben definita e pari a  $\hbar\omega(n + \frac{1}{2})$ . Questi stati sono chiamati autostati fononici ed il quanto di energia  $\hbar\omega$  di un modo normale vibrazionale del reticolo cristallino è detto fonone.

E' molto difficile sviluppare un collegamento intuitivo fra l'oscillatore armonico classico, come un pendolo oscillante, e quello quantistico considerando gli stati citati, dotati, al contrario, di una posizione media statica. Per tessere un link fra i due, è opportuno introdurre gli stati coerenti.

Definiamo ora, in modo implicito, gli operatori di creazione e distruzione  $\hat{a} \in \hat{a}^{\dagger}$ :

$$\begin{cases} \hat{q} = \frac{\hat{a}^{+} + \hat{a}}{\sqrt{2}} \\ \hat{p} = \frac{i(\hat{a}^{+} - \hat{a})}{\sqrt{2}} \end{cases}$$

Gli operatori  $\hat{a} \in \hat{a}^{\dagger}$  non sono osservabili perchè non hermitiani ed agiscono al seguente modo sugli autostati  $|n\rangle$ :

$$\begin{cases} \hat{a} | n >= \sqrt{n} | n - 1 > \\ \hat{a}^{\dagger} | n >= \sqrt{n+1} | n + 1 > \end{cases}$$

Si definiscono *stati coerenti* gli stati quantistici che soddisfano la relazione agli autovalori seguente:

$$\hat{a} \mid \alpha \rangle = \alpha \mid \alpha \rangle, \ \alpha \in C$$

La definizione ci permette di trovare la forma dello stato coerente  $|\alpha\rangle$  nella base degli autostati numero  $|n\rangle$ :

$$|\,\alpha>=e^{-|\alpha|^2}\sum_{n=0}^\infty\frac{\alpha^n}{\sqrt{n!}}\,|\,n>$$

Analizziamo ora alcune fondamentali proprietà di questi stati.

Valutiamo la media dell'operatore posizione e momento in questi stati:

• 
$$\langle \alpha(t) | \hat{q} | \alpha(t) \rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} \langle \alpha(t) | \hat{a}^+ + \hat{a} | \alpha(t) \rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} (\alpha^* e^{i\omega t} + \alpha e^{-i\omega t}) = \sqrt{2}\alpha \cos(\omega t - \theta)$$

• 
$$\langle \alpha(t) | \hat{p} | \alpha(t) \rangle = \frac{i}{\sqrt{2}} \langle \alpha(t) | \hat{a}^{+} - \hat{a} | \alpha(t) \rangle = \frac{i}{\sqrt{2}} (\alpha^{*} e^{i\omega t} - \alpha e^{-i\omega t}) = -\sqrt{2}\alpha \sin(\omega t - \theta)$$

Le medie di posizione e momento della particella quantistica oscillano in antifase come quelle di un pendolo classico di frequenza  $\omega$ . L'evoluzione di uno stato coerente nello spazio delle fasi è molto simile a quella che caratterizza un oscillatore armonico classico con l'importante differenza che quest'ultimo è indicato univocamente con un punto  $(p,q) \in \Gamma$  (spazio delle fasi). Il diagramma seguente illustra correttamente il significato:



Figure 2.6: (a) Evoluzione libera di uno stato coerente nello spazio delle fasi; (b) andamento sinusoidale di  $\langle \alpha(t) | \hat{q} | \alpha(t) \rangle$ , la traccia in grigio indica le posizioni più probabili della particella attorno alla posizione media. I graifici sono stati tratti da [12] e adattati al contesto.

Si può dimostrare, inoltre, che gli stati coerenti sono stati quantistici a minima indeterminazione per i quali vale che  $\sigma_q = \sigma_p$  e anche:

$$\sigma_q \sigma_p = \hbar/2$$

#### Interazione fra campo elettromagnetico e modi vibrazionali

La radiazione elettromagnetica interagisce con il materiale come una forzante esterna a frequenze molto alte e, in un esperimento a luce impulsata, la durata dell'interazione è così breve rispetto ai periodi caratteristici di oscillazione del reticolo elastico, che il sistema percepisce la radiazione come una perturbazione forte ed istantanea. Quest'ultima stimola la generazione di onde vibrazionali le quali producono una modulazione del segnale di *Probe* trasmesso. Immaginiamo ora di aver diagonalizzato l'Hamiltoniana classica H relativa al reticolo di  $YBa_2Cu_3O_{6,9}$ , ipotizzando che tutti gli atomi risentano di un potenziale quadratico. A questo punto, possiamo separare l'energia nei vari contributi grazie all'introduzione di coordinate normali e scrivere che per il modo i - esimo, il contributo a tutta l'Hamiltoniana è della forma:

$$h_i^{(0)} = \frac{p^2 + \omega^2 q^2}{2}$$

Seguiamo un modello semi-classico con il quale l'impulso istantaneo di Pump può essere introdotto nell'hamiltoniana come una funzione  $\delta(t)$ .

$$h_i(t) = \frac{p^2}{2} + \frac{(q - q_0 \delta(t))^2}{2} = h_i^{(0)} - q_0 \delta(t)q + \frac{q_0^2 \delta(t)^2}{2}$$

Si può dimostrare che, dopo aver quantizzato l'hamiltoniana classica introducendo gli operatori  $\hat{a} \in \hat{a}^{\dagger}$  e imponendo la relazione di commutazione, l'interazione fra il reticolo e l'impulso provoca un'oscillazione coerente che modula la funzione dielettrica alla frequenza del modo normale corrispondente [22]. Per una trattazione formale approfondita di questo tema si rimanda a [11]. Nella sezione 4.3 di questa tesi, si individuano due frequenze caratteristiche analizzandone la dipendenza dalla temperatura, dall'energia dell'impulso di radiazione incidente e ipotizzando una relazione con la fase superconduttiva del sistema.

## 3 Apparato sperimentale

Il setup sperimentale è costituito da una sorgente laser impulsata a lunghezza d'onda centrale di 800 nm, una serie di dispositivi ottici (lenti, pinholes, specchi e beam-splitter) posizionati su un banco ottico, un criostato pompato a vuoto contenente il campione (un film sottile 80 nm di  $YBa_2Cu_3O_{6,9}$ ), un photodetector e un sistema lock-in collegato all'apparato di misura. Descriveremo di seguito le diverse parti dell'apparato separatamente.

#### 3.1 Sorgente Laser

La sorgente luminosa utilizzata nell'esperimento è una sorgente di luce laser impulsata che produce impulsi ultracorti (80 fs). Gli impulsi prodotti hanno lunghezza d'onda di  $\lambda = 800 nm$  (1, 55 eV) e  $\Delta \lambda = 35 nm$ . Le sorgenti utilizzate lavorano in regimi di *mode locking* passivo (*kerr lens mode locking*) grazie al quale è possibile generare impulsi molto brevi ed intensi di radiazione (con un *repetition rate* finale, dopo l'amplificazione, di 250 KHz).

Lo schema generale di un laser impulsato è riportato in fig. 3.2. Di seguito, descriveremo il regime di *mode locking* per la produzione di impulsi ultracorti e successivamente i dettagli della sorgente laser utilizzata.

#### 3.1.1 Mode locking

Nella cavità risonante di un laser sono sostenuti solamente i modi con determinati vettori d'onda  $\vec{k}$ . Focalizzando l'attenzione unicamente sulla direzione longitudinale  $\hat{x}$  della cavità lunga L, è noto che all'equilibrio permangono i modi del campi elettrico che soddisfano la condizione di "zero" sulle pareti. Le lunghezze d'onda permesse sono dunque:

$$k_x = \frac{n_x \pi}{L} \implies \lambda = \frac{2L}{n_x}$$

Tutti i modi del campo elettrico del tipo:

$$E_n = E_{0_n} e^{i(\omega_n t + \phi_n)}$$

differiscono, quindi, in frequenza per una costante pari a  $\Delta \nu = \frac{c}{2L}$ . In un laser tradizionale, essi possiedono una fase temporale relativa casuale e quindi, supponendo di considerare Ncomponenti di campo indipendenti con la stessa ampiezza  $E_0$  in una banda limitata di frequenze B, l'intensità risulta essere proporzionale a:

$$I(t) \sim |\sum E_{0_j} e^{i(\omega_j t + \phi_J)}|^2 = N |E_0|^2$$

La luce, costituita dall'interferenza prodotta, ha intensità costante e si parla di *continous wave* (CW).

Se invece, le componenti del campo oscillano con una relazione di fase fissata mode-locked ( $\phi_n - \phi_{n-1} = \phi_0$ ), si riesce a produrre un regime di radiazione "impulsata" [7]. L'interferenza prodotta da N campi oscillanti a  $\omega_n = \omega_0 + n\Delta\omega$  con  $\phi_n = n\phi_0$  e con uguale ampiezza  $E_0$  è data dalla somma seguente:

$$E(t) = E_0 \sum_{n=-N}^{N} e^{i(\omega_n t + \phi_n)} = E_0 e^{i\omega_0 t} \cdot \left( \sum_{0}^{N} e^{i(\Delta\omega t + \phi_0)n} + \sum_{1}^{N} e^{-i(\Delta\omega t + \phi_0)n} \right)$$

Definendo la quantità  $\gamma = \Delta \omega t + \phi_0$  e sfruttando le proprietà della serie geometrica si ricava:

$$E(t) = E_0 e^{i\omega_0 t} \cdot \frac{\sin(\frac{2N+1}{2}\gamma)}{\sin(\frac{\gamma}{2})}$$

L'intensità proporzionale a  $E(t)E^*(t)$  ha una forma del tipo:

$$I(t) = k \left[ E_0 \frac{\sin(\frac{2N+1}{2}(\Delta \omega t + \phi_0))}{\sin(\frac{\Delta \omega t + \phi_0}{2})} \right]^2$$

Come si vede dal risultato, il campo prodotto è tutt'altro che costante e l'intensità, visualizzabile nel grafico seguente, è costitutita da un treno di impulsi distanziati fra di loro di  $\tau = 2\pi/\Delta\omega$ .



Figure 3.1: Le due immagini illustrano la distribuzione temporale e la forma degli impulsi secondo la modellizzazione della tecnica di *mode-locking*. Prima di subire la *chirped pulse amplification*, questi distano circa 12*ns* e il parametro *Full Width at Half Maximum* (FWHF) che caratterizza la larghezza dell'impulso vale 80 *fs*.

Questa descrizione è una modellizzazione semplificata della produzione di impulsi laser. Nelle sorgenti utilizzate, viene sfruttata la tecnica del *Kerr Lens Modelocking*, di cui, però non parleremo in questa tesi.

Per il laser utilizzato, il numero di modi coinvolti nell'interferenza all'interno della cavità con L = 2 m è dell'ordine di 10<sup>4</sup>, la frequenza centrale per il laser con  $\lambda = 800$  nm è  $\omega_0 = 2, 36 \cdot 10^{15} Hz$ , quindi, la distanza in frequenza fra due modi sostenuti è  $\Delta \omega = \pi \cdot c/L = 9, 42 \cdot 10^8 Hz$ . I picchi di intensità sono dunque separati da un tempo  $\tau = 12, 2 ns$  ed hanno una durata media di 80 fs. Le due immagini illustrano correttamente la sequenza di impulsi ottenuti tramite mode-locking e la forma del singolo picco.

#### 3.1.2 Chirped pulse amplification

In laboratorio, le misure sono state effettuate grazie ad una serie di sorgenti e amplificatori ottici disposti sul banco di lavoro. Un laser a Nd :  $YVO_4$  "Verdi V - 18" è utilizzato per pompare con una radiazione continua a  $\lambda = 532 nm$  una cavità laser impulsata "Mira 900" in cui il mezzo attivo è costituito da Titanio dopato da  $Al_2O_3$ . Tramite questi strumenti, vengono prodotti impulsi ad energia di  $1,55 \, eV$  ( $\lambda = 800 \, nm$  e  $FWHM \sim 30 \, nm$ ) con un repetition rate (RR) di  $80 \, MHz$  e con una potenza media di circa 0, 6 W. Ogni impulso ha una durata di circa  $80-100 \, fs$ . Per amplificare tali impulsi si sfrutta la tecnica chiamata *chirped pulse amplification* (CPA). Questa prevede tre fasi: *streching, amplification* e *compression*.

Nel processo di *stretching*, mediante una serie di riflessioni su un reticolo diffrattivo, l'impulso viene allungato temporalmente di circa 1000 volte tramite la dispersione delle sue componenti spettrali che, dopo la diffrazione ad angoli differenti, percorrono lunghezze ottiche differenti fra due specchi. L'impulso viene successivamente inviato in una cavità rigenerativa (RegA) entro la quale vi è un mezzo attivo che può essere attraversato per un numero di cicli controllabile. All'uscita della cavità, le varie componenti spettrali dell'impulso risultano amplificate. Quest'ultimo è condotto poi all'interno del *compressor*, in cui subisce una seconda serie di riflessioni su un reticolo. Lo schema ottico del compressore è l'inverso di quello dello *stretcher* ed è realizzato in modo tale che le lunghezze d'onda portate dalla coda dell'impulso possano percorrere minor spazio per ottenere una ricompressione dello stesso [8].

Tramite questo processo, si dispone di un treno di impulsi compressi con potenza media di 1, 2W, ma con un RR inferiore, pari a 250 KHz. Ciò significa che gli impulsi hanno un'energia ciascuno di circa  $5 \mu J$  e sono separati temporalmente di  $4 \mu s$ .

La sorgente laser può essere schematizzata in questo modo:



Figure 3.2: Schema della produzione di luce impulsata. Al setup viene inviata luce impulsata a  $\lambda = 800 nm$  con un  $RR = 250 \ KHz$  alla potenza media di 1, 2W.

## 3.2 Descrizione del setup ottico

Il ritardo temporale  $\phi$  fra *Pump* e *Probe* è prodotto tramite il movimento di uno specchio posizionato su un traslatore cotrollato via software. La risoluzione nominale della posizione lungo il binario è di 1 nm e può muoversi su un tratto esteso 25 mm.

Il photodetector (PD) è dotato di un livello di saturazione luce-corrente e la proporzionalità fra intensità del fascio e fotocorrente è garantita fino ad un massimo di d.d.p. prodotta di 2V. Per non saturare il diodo, si sono posizionati lungo i cammini ottici di P&P un pin-hole comune (PH) e una coppia di polarizzatori e di lamine  $\lambda/2$  (HWP). La divisione iniziale del fascio è stata ottenuta tramite un beam-splitter (BS) al 50% (Fig.3.3). A monte di questa suddivisione ne era già stata prodotta una in output al sistema di chirped pulse amplification per permettere ad altri setup sperimentali di usufruire del laser. La potenza del laser complessivamente sfruttatata è una frazione inferiore all'1%.



Figure 3.3: Dettaglio del setup ottico per ottenere un ritardo controllato tra *Pump* e *Probe*. In rosso sono rappresentati gli specchi, in nero i *pin-holes*, in blu le lamine  $\lambda/2$  e in azzurro i due polarizzatori.

Nel corso dell'esperimento, sono risultati utili anche dispositivi come filtri, paratie e cartoni oscuranti per proteggere l'apparato sperimentale da eccessiva luce ambientale. Indispensabile è stata una cartina sensibile all'infrarosso, utile a centrare e ad allineare il fascio nei dispositivi in corso d'opera. Un allineamento ben studiato e stabile costituisce un fattore determinante per ottenere un segnale nei diodi meno affetto da rumori elettronici ed ambientali.

Per riuscire a sovrapporre con estrema precisione il fascio di *Pump* con quello di *Probe* sulla superficie del campione, è stato utilizzato l'occhio artificiale di una videocamera con ottima risoluzione.

La parte di setup descritta finora è comune a due metodi di misura di  $\Delta T/T$  implementati in laboratorio: l'acquisizione via amplificazione *lock-in* e l'acquisizione grazie a photodetector differenziale. La produzione di ritardo tra i due fasci è distinta unicamente dall'inserimento di un chopper meccanico lungo il percorso del *Pump* nel caso della prima tecnica.

#### Setup ottico in acquisizione lock-in

Per effettuare la misura tramite amplificatore lock-in, il fascio di *Probe*, dopo essere stato focalizzato e riallargato tramite due lenti  $L_1$  e  $L_2$  di distanza focale  $\sim 10 \, cm$ , è stato deviato mediante lo specchio  $M_1$  al *photodetector*. Il segnale in *output* da quest'ultimo è dato in *input*  all'amplificatore *lock-in* al quale è collegato anche il segnale di riferimento del *chopper* impostato ad una frequenza di  $\sim 220 Hz$ .

Il campione S è incollato tramite i bordi ad un portacampioni che è posizionato verticalmente all'interno del criostato in modo che il fascio di *Probe* incida il film di  $YBa_2Cu_3O_{6,9}$  ad angolo normale. Il criostato, durante le misure, è stato raffreddato con *He* liquido a temperature variabili progressivamente da 5K a 300K e pompato a vuoto ad una pressione prossima a  $10^{-6} mbar$ .

Il setup può essere schematizzato dalla figura seguente:



Figure 3.4: Setup ottico in *lock-in amplification*: *Probe* e *chopped Pump* godono di coincidenza spaziale e temporale nell'incidere il campione. La lunghezza relativa dei due cammini ottici è controllabile tramite un traslatore meccanico posto sul percorso del fascio di pompa (non mostrato in figura). Il fascio di *Probe* trasmesso incide su un fotodiodo e il segnale viene inviato all'amplificatore *lock-in*.

#### Setup ottico in acquisizione tramite photodetector differenziale

Grazie a questa tecnica, approfondita nella sottosezione 3.3.2, si riesce a discriminare informazioni associate ad ogni singolo impulso trasmesso e studiarne così la statistica.

Le modifiche rispetto al setup precedente non sono molte, ma una sostanziale differenza consiste nell'avere un fascio di riferimento da deviare verso la fibra  $F_1$  attraverso la successione di specchi  $M_4$  ed  $M_5$ . Per compattare il setup, sono state inserite due fibre ottiche  $F_1$  e  $F_2$ . Davanti alle stesse, sono posizionati in stretta vicinanza un polarizzatore e una lamina  $\lambda/2$ . In questa configurazione, è stato utilizzato un detector differenziale.

La figura 3.5 riassume schematicamente l'apparato:



Figure 3.5: Setup ottico in acquisizione differenziale: il *detector* sottrae il segnale di riferimento di ogni impulso da quello di *Probe* trasmesso dal campione.

Grazie al driver della scheda di acquisizione SBench 6.1, è stato costantemente possibile visualizzare in tempo reale il segnale differenza prodotto dalle tensioni generate ai capi del *photodetector*. Per poter campionare  $\Delta V$  in funzione del *delay*, è stato innanzitutto necessario "bilanciare" il riferimento ed il *Probe* prima di ogni scansione, mantenendo oscurato il *Pump*. Scelta una tensione massima per il segnale di Probe  $V_p$  inferiore al limite di non-linearità dei fotodiodi nel detector, si è regolato la  $HWP_1$  in modo da ottenere un segnale di riferimento  $V_r$  che bilanciasse quello di Probe nel modo migliore. Idealmente, a questo punto, la differenza fra i due sarebbe dovuta essere nulla indipendentemente dal tempo, ma fenomeni di rumore, fluttuazioni del laser e instabilità del setup hanno sempre impedito che ciò si verificasse. In modo realistico, quindi, la sfida è stata quella di minimizzare  $|\Delta V|$  e, solo mediante allineamenti fini, si è riusciti a darne un limite superiore di circa 4 mV (Fig.3.8).

Realizzato un setup stabile, è stato necessario trovare il *punto di zero*, ossia la posizione  $x_0$  del traslatore che rendeva identici il percorso di P&P. Nota questa posizione, si è riusciti a stabilire una relazione lineare fra coordinata della slitta e ritardo temporale fra i due impulsi. A temperatura ambiente, ciò non è stato facile poichè la variazione di trasmittività è circa 8 volte inferiore a quella che si misura a bassissime temperature e il rumore di fondo impediva di distinguere nettamente l'interferenza fra i due impulsi contemporanei.

In questa tesi, analizzeremo i dati ottenuti dalle misure basate sulla tecnica di acquisizione standard per mezzo di un amplificatore lockin. I dati acquisiti a singolo impulso sono risultati di qualità inferiore e migliorie al setup sono necessarie per rendere questo schema fruibile. Daremo comunque luce alle curve  $\Delta T/T$  ricavate da fotodiodi differenziali mostrando i difetti e le potenzialità di questa tecnica.

#### 3.3 Sistemi di acquisizione

Sono stati implementati due schemi di acquisizione dati associati ai due setup ottici fin qui descritti.

#### 3.3.1 Acquisizione Lock-in

Acquisire tensioni tramite *lock-in* significa studiare il comportamento di un segnale fisico in una finestra di frequenze molto stretta. Se lavoriamo, infatti, ad una *narrow-band* idealmente scrivibile come  $[\omega - \epsilon; \omega + \epsilon]$ , è possibile discriminare segnali deterministici anche deboli da rumori di fondo altrimenti significativi. Vogliamo ora discutere i principi di questo metodo, la sua applicazione ed i suoi grandi vantaggi.

Il fascio di pompa, prima di giungere al campione, viene modulato attraverso un chopper ottico, mostrato in figura 3.3. Questo è un dispositivo composto da un'elica rotante capace di interrompere il passaggio della luce ad intervalli regolari e ad una frequenza  $\omega$  programmabile. Se il *Pump* è modulato, allora tutto il segnale  $\Delta T(t)$  risente di questo effetto e lo studio del segnale sarà molto più sensibile solo se ne considereremo la componente di Fourier alla frequenza citata. Per ottimizzare i vantaggi di questo sistema, è stato scelto un fotodiodo la cui risposta in tensione fosse lenta rispetto al repetition rate del laser; così facendo, il segnale prodotto in funzione del ritardo temporale di P&P si mantiene pressochè costante per tutto l'intervallo di attesa fra un impulso laser e quello successivo ( $\sim 4 \, \mu s$ ).



Figure 3.6: Scatola di controllo e chopper utilizzati in laboratorio.

Possiamo riassumere l'idea di funzionamento dell'amplificatore in questo modo. La moltiplicazione di un segnale f(t) per una sinusoide  $cos(\omega t)$  genera una tensione in ingresso del tipo  $f(t) \cdot cos(\omega t)$ . Se disponiamo di un circuito integratore di questo segnale per un tempo T(parametro definibile dallo sperimentatore nell'amplificatore lock-in), il risultato dell'integrale può essere scritto sfruttando la funzione:

$$g(t) = \begin{cases} 1 & |t| < T/2 \\ 0 & |t| \ge T/2 \end{cases}$$

come:

$$I_{\omega} = \int dt \cdot g(t) f(t) \cos(\omega t) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega' F(\omega') G(\omega - \omega')$$

L'output dell'amplificatore è una tensione proporzionale al valore dell'integrale  $I_{\omega}$  che, in questo caso, è una convoluzione fra la trasformata di Fourier di  $f(t) \in g(t)$ , rispettivamente denominate  $F(\omega) \in G(\omega)$ .

La trasformata della finestra rettangolare è calcolabile come:

$$G(\omega) = \int_{-T/2}^{T/2} dt \cdot e^{-i\omega t} = Tsinc(\frac{\omega T}{2})$$

Tale funzione si azzera per le prime due volte in  $\omega = \pm 2\pi/T$  ed è dotata di una larghezza del

picco a metà altezza pari a  $\Delta \omega = 2\pi/T$  (Fig. 3.7). All'aumentare del tempo di integrazione T, è possibile teoricamente restringere ulteriormente la banda di frequenze migliorando la capacità di discriminare il segnale deterministico dal rumore. Un eccessivo prolungamento della misura, d'altra parte, rischia, nella pratica, di riportare rumori a bassa frequenza normalmente presenti. Lo schema logico di funzionamento di un *lock-in amplifier* è il seguente [9]:



Figure 3.7: Schema logico di un *lock-in amplifier* tratto da [9] e Trasformata di Fourier della finestra rettangolare.

L'AC-Amplifier è un amplificatore di tensione che rigenera il segnale in ingresso  $V_{in}$ . Quest'ultimo contiene sia le informazioni che lo sperimentatore vuole misurare, come frequenze caratteristiche o tempi di decadimento, sia un insieme di effetti indesiderati dovuti all'elettronica e all'instabilità dell'apparato sperimentale. Spesso, all'amplificatore iniziale, è affiancato un filtro passabanda che seleziona un intervallo di frequenze vicino a quella del segnale periodico locale prodotto dal *Voltage Controlled Oscillator* (VCO). Questo sistema può essere sincronizzato in frequenza anche ad una sorgente esterna (chopper) e rende possibile una prima attenuazione di rumore a bassissima frequenza ( $\simeq 1/\omega$ ). La frequenza del chopper e del segnale locale (VCO)  $\omega$  è scelta in modo che rumori come *Flicker-noise* e Shot-noise abbiano densità spettrale praticamente costante in questa regione. La differenza di fase fra i due segnali è di solito un'impostazione dello strumento regolabile tra 0° e 360° grazie ad un circuito di *phase-shifting*.

Il Phase Sensitive Detector (PSD) agisce da multiplier, moltiplica cioè i due segnali e invia il prodotto ad una serie di filtri passabasso digitali o analogici (i.e. RC). Se il riferimento e la componente del segnale da analizzare hanno la stessa frequenza, come è consueto avere, la moltiplicazione produce una copia dell'informazione nell'intorno della frequenza nulla (DC) ed una a frequenza doppia  $2\omega$ . Per lo stesso fatto, tutto lo spettro viene traslato in frequenza di  $\omega$ (per esempio, anche i picchi nello spettro delle armoniche di 60 Hz sono traslati di  $\pm \omega$ ).

I filtri citati servono ad eliminare armoniche ad alta frequenza prodotte e, soprattutto, svolgono il ruolo di integratori del segnale modulato. Il tempo di integrazione è, appunto, il periodo T

di cui abbiamo già parlato in precedenza. Il segnale in uscita, rigenerato tramite una serie di amplificatori operazionali, è una tensione continua la cui ampiezza è idealmente proporzionale al coefficiente di Fourier della componente alla frequenza  $\omega$  solo se  $T \gg \frac{2\pi}{\omega}$ . Per tempi T finiti, dobbiamo invece interpretare l'output come una convoluzione tra la Trasformata e la funzione  $G(\omega)$  descritta precedetemente.

#### 3.3.2 Digitalizer

Il secondo sistema di acquisizione adottato nel corso dell'esperimento è basato sull'utilizzo di fotodiodi differenziali e sullo sfruttamento di una scheda d'acquisizione (ADC SBench 6.1) a 8 bit con un sampling-rate di 1GSamples/s. La velocità di campionamento della scheda ha reso possibile immagazzinare un dato ogni nanosecondo e ha permesso la digitalizzazione del voltaggio prodotto sul diodo da ogni singolo impulso. Vengono acquisiti dalla scheda e digitalizzati in PC segnali  $\Delta V$  ottenuti da una differenza di tensioni  $V_p \in V_r$ . Queste sono lette da un fotodetector differenziale tramite due collegamenti a fibra ottica. Nella regione sensibile della prima fibra, incide il fascio di Probe che ha agito da sonda ed è stato trasmesso dal campione; nella seconda, invece, viene raccolto un segnale di riferimento  $V_r$ , derivante dallo splitting del fascio di Probe con un beam-splitter. Sperimentalmente, è possibile costruire un setup che permetta ai due fasci di percorrere lo stesso cammino ottico prima di arrivare alle fibre in modo da confrontare gli effetti prodotti sui singoli impulsi. Inoltre, poichè le tensioni prodotte sono proporzionali alle intensità dei fasci, la quantità  $\Delta V/V_r$  è proporzionale alla variazione relativa di trasmittività  $\Delta T/T$ . Nella figura che segue, si può apprezzare la forma caratteristica di un impuso letta a mezzo di un fotodetector e l'effettiva differenza tra i due segnali molto simili in valore assoluto:



Figure 3.8: Risposta del fotodiodo differenziale: in blu il segnale rilevato dal fotodiodo 1 e in verde quello dal fotodiodo 2. La curva rossa rappresenta invece la differenza fra i due. Si noti come la risposta dei diodi sia molto più lunga ( $\sim 40 ns$ ) di quella della durata effettiva dell'impulso di luce ( $\sim 80 fs$ ).

Il numero di impulsi a disposizione nell'unità di tempo è statisticamente rilevante ( $RR = 250 \ KHz$ ) e, per ogni fissato ritardo temporale  $\phi$  fra *Pump* e *Probe*, è possibile mediare le risposte di un vasto ensamble statistico. Per la precisione, grazie ad un software LabWiev, ogni serie di punti raccolta del tipo  $\Delta V(t)$  viene integrata fra due tempi stabiliti  $t_i$  e  $t_f$ ; tale valore viene mediato su migliaia di impulsi fornendo una stima di  $\Delta V(\phi)$ . Inoltre, per ogni misura, sono state effettuate una o due decine di scansioni in  $\phi$  tramite il movimento del traslatore posizionato lungo il cammino del *Pump*.

Occorre precisare che le tensioni misurate V(t) sono ovviamente proporzionali alle correnti I(t) e, di conseguenza, l'integrale citato è direttamente legato alla carica che si libera nei semiconduttori di cui sono costituiti i due fotodiodi del detector:

$$Q_{tot} \propto \int\limits_{t_i}^{t_f} dt V(t)$$

Noti i fenomeni di creazione di cariche libere-lacune dovute all'assorbimento di un fotone nel silicio, si può concludere, dunque, che la carica totale è proporzionale al numero di fotoni incidenti sui fotodiodi.

#### 3.4 Descrizione del campione

Il campione analizzato è  $YBa_2Cu_3O_{6,9}$ , un cristallo sintetico che, da anni, è al centro di grande interesse sperimentale e teorico poichè si tratta di un superconduttore ad alta temperatura critica ( $HT_cSC$ ). Fa parte della famiglia degli ossidi di rame (*Cuprates*) e differisce dagli altri  $HT_cSC$  poichè, oltre a contenere piani di  $CuO_2$ , ospita catene di CuO che donano portatori di carica (lacune positive) ai piani superconduttori. La presenza di molte differenti nanostrutture all'interno del solido è dovuta anche alle numerose lacune di ossigeno nei siti citati. Il composto ha una struttura cristallina ortorombica con 13 atomi per cella unitaria [17] [21].

La temperatura critica della rottura della fase superconduttiva  $T_c$  è di circa 90 K, anche se può variare leggermente, a seconda di come è stato accresciuto il campione e del dopaggio di ossigeno. Per il campione utilizzato, il contenuto di ossigeno nel reticolo cristallino è prossimo a quello ottimale e la  $T_c$  è stimata attorno agli 88 – 90 K [10]. Il substrato utilizzato è LaAlO<sub>3</sub> e lo spessore del film è di circa 80 nm.



Figure 3.9: Rappresentazione della cella unitaria di YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>6,9</sub>.

Il grafico seguente mostra la relazione tra resistenza e temperatura per il campione da noi analizzato in laboratorio [10]. Al di sopra di 90 K, la resistività è lineare con la temperatura, mentre l'ingresso nella fase di superconduttività risulta evidente a temperature prossime ai 90 K.



Figure 3.10: Analisi di resistenza in funzione di temperatura realizzate da M. Radovich (PSI, Switzerland) [10].

## 4 Risultati e discussione

#### 4.1 Trasmissione da film sottile

E' possibile misurare la potenza media del fascio di pompa dopo il chopper mediante un powermeter, interposto e tolto lungo il percorso ottico con facilità. Per modificare l'intensità del *beam* citato, si ruota con continuità una HWP in serie ad un polarizzatore oppure si inseriscono filtri ottici standard nel cammino del fascio. E' stata studiata la dipendenza del segnale di *Probe* trasmesso dalla fluenza del fascio di *Pump* e dalla temperatura del criostato.

Alla temperatura di 5 K, sono state compiute misure a quattro energie differenti di impulso di pompa da 76,  $4 \mu J/cm^2$  a 763,  $9 \mu J/cm^2$  ottenendo le seguenti curve per  $\Delta T/T$ .



Figure 4.1: Confronto in fluenza: a 5K, si osservano differenze significative di  $\Delta T/T$  per le quattro energie di *Pump* presentate nella legenda.

Dal punto di vista fisico, siamo interessati al comportamento della curva di *Pump* and *Probe* a time-delay positivi. A tempi negativi, infatti, la trasmittività rimane costante poichè il campione non è perturbato dal *Pump* e la misura sarà proporzionale soltanto alla trasmittività statica del campione. Dai grafici, si nota, però, come nella regione temporale ampia circa 0, 4 ps, immediatamente prima dello "zero", il segnale presenta una serie di numerosi massimi e minimi. Questi sono l'effetto dell'interferenza fra i due impulsi laser e non verranno discussi in dettaglio di seguito.

Ad un ritardo temporale di circa t = 6,9 ps, si nota la presenza di una seconda regione di interferenza. L'origine di questa è da attribuire alla riflessione interna del fascio di pompa nel vetrino su cui sono cresciuti i film sottili di  $YBa_2Cu_3O_{6,9}$ . Schematizziamo ciò che avviene, attraverso una sezione del criostato vista dall'alto:



Figure 4.2: Schema della riflessione interna avvenuta sul vetrino di sul quale è stato cresciuto il campione.

Valutiamo la consistenza del nostro ragionamento. Se t = 6,9 ps, allora lo spessore d del vetrino può essere calcolato secondo l'espressione che segue:

$$d \simeq \frac{c \cdot t}{2 \cdot n}$$

dove *n* è l'indice di rifrazione del vetro che supponiamo essere  $\sim 1, 6$ . Da ciò si ottiene  $d \simeq 0, 65 mm$ , che è una lunghezza coerente con quanto disponevamo in laboratorio.

# 4.2 Misure di *Pump* and *Probe* in funzione di temperatura e energia di pompa

Il segnale di trasmittività presenta una forte dipendenza dalla temperatura. Una differenza significativa tra le risposte del sistema è presentata quando questo si trova nelle due differenti fasi. Per evidenziare questo concetto, risulta efficace presentare un grafico delle due curve di dati raccolte in condizioni ambientali a 300 K e a 5 K. Si è scelto di focalizzare l'attenzione solo sui primi 1200 fs di time-delay, entro i quali la trasmissione torna ai valori di equilibrio per  $T > T_c$ .



Figure 4.3: Differenze di  $\Delta T/T$  per il campione con e senza criostato con energia per impulso di 713,  $0 \mu J/cm^2$ .

A temperature prossime ed inferiori ai 100 K, la diminuzione relativa della trasmittività è circa cinque volte quella osservata in condizioni ambientali. Questa importante osservazione è la causa delle difficoltà incontrate nell'operazione di *ricerca dello zero* in fase sperimentale. Operando in condizioni ambientali, la coincidenza temporale di arrivo di *Pump* e *Probe* sul campione produce un segnale molto debole che si confonde con il rumore di fondo.

Alla energia fissata di 407,  $4 \mu J/cm^2$  di impulso di pompa, è stata compiuta un'analisi del segnale per alcune temperature. I grafici sottostanti esprimono l'evoluzione di  $\Delta T/T$  in tre distinte condizioni:

- 1. Fase superconductiva (T = 10 K e T = 50 K);
- 2. Transizione di fase (T = 70 K e T = 90 K);
- 3. Fase normale (T = 120 K e T = 140 K).



Figure 4.4: Confronto in temperatura per misure effettuate a  $407, 4 \mu J/cm^2$  di impulso di pompa: il grafico in alto riporta l'andamento del parametro  $\Delta T/T$  per due temperature in fase superconduttiva  $(T < T_c)$ , mentre l'ultimo in basso presenta il fenomeno per altrettante temperature in condizioni di  $T > T_c$ . Infine, appare interessante dare uno scorcio di  $\Delta T/T$  a ridosso della transizione di fase (grafico al centro) mostrando la differenza del segnale sopra e sotto  $T_c$ . La ripresa della trasmittività è governata in ogni caso da un esponenziale, ma ciò che distingue le due fasi è il parametro di *decay-time*.

La differenza qualitativa fra l'andamento di  $\Delta T/T$  in fase superconduttiva e in fase normale è costituita dal valore del parametro di *decay-time*. Con il supporto dei grafici esposti e di letteratura a riguardo [20], possiamo interpretare la dinamica di rilassamento nella fase superconduttiva in due *steps*:

- 1. l'assorbimento della fotoeccitazione indotta dall'impulso provoca la rottura di coppie di Coopers con la conseguente produzione di Quasi-Particelle (circa 0, 5 ps);
- 2. la ricombinazione di coppie di Quasi-Particelle determina la ricostituzione della fase superconduttiva che si completa in  $4-5\,ps$ . Dal *pairing*, vengono emessi Fononi ad Alta Frequenza. Questi possono inizialmente avere un'azione distruttiva nei confronti delle coppie, ma fenomeni di *scattering* anaelastico producono il loro rapido assorbimento e la definitiva termalizzazione del sistema.

## 4.3 Analisi

Analizziamo più in dettaglio la variazione di trasmittività ed il suo legame con la temperatura di termalizzazione. Si ricordi che la  $T_c$  stimata per il nostro campione da misure di resistività è di circa 88 – 90 K [10]. Il grafico seguente illustra, ad alcuni ritardi temporali tra P&P, l'andamento del segnale in funzione della temperatura all'energia di pompa di 407,  $4 \mu J/cm^2$ . Parallelamente, si osserva che una maggiore energia per impulso di pompa riesce a produrre un effetto più significativo sulla variazione di trasmittività. Agli stessi time-delay considerati precedentemente, si possono "fotografare" i fenomeni di rilassamento in funzione della fluenza del Pump e vedere come il modulo della grandezza  $\Delta T/T$  scali linearmente rispetto all'energia per impulso. Il ritado temporale riferito ai grafici riportati è fissato a  $t_1 \simeq 1 ps$ ,  $t_2 \simeq 2 ps$  e  $t_3 \simeq 3 ps$ .



Figure 4.5:  $\Delta T/T$  a tre tempi fissati in funzione di temperatura (407, 4  $\mu J/cm^2$ ) e di fluenza di Pump (T = 5 K).

Tramite la risoluzione delle RTE in particolari condizioni al contorno, è stato mostrato che le caratteristiche curve di rilassamento  $\Delta T/T$  si prestano bene ad un'interpolazione con una funzione del tipo ~  $-e^{-t/\tau}$  dove il parametro  $\tau$  decay-time indica il tempo necessario per ridurre di un fattore e la variazione massima. I tempi di decadimento forniscono informazioni importanti nel contesto del meccanismo di assorbimento della fotoeccitazione e della ricostruzione della fase superconduttiva da parte del reticolo  $YBa_2Cu_3O_{6,9}$ .

Un esempio di quanto fatto è mostrato nella figura seguente; il parametro ottenuto dall'interpolazione è evidenziato nella legenda:



Figure 4.6: Esempio di interpolazione con  $f(t) = -Ae^{-t/\tau} + C$ . Nella legenda è riportato il valore stimato di  $\tau$ .

Riportiamo i valori di *decay-time*  $\tau$  ricavati dall' interpolazione in funzione dalla temperatura. Il grafico è facilmente interpretabile: superata  $T_c$ , le dinamiche sono governate da tempi caratteristici di molto inferiori.



Figure 4.7: Tempi di decadimento  $\tau$  ottenuti dall'analisi dati di  $\Delta T/T$  all'energia di impulso di pompa di 407,4  $\mu J/cm^2$  per differenti temperature.

Analizzando, invece, i tempi di decadimento in funzione dell'energia per impulso di pompa, non si riesce ad avere un riscontro intuitivo come per l'analisi in temperatura:



Figure 4.8: Tempi di decadimento  $\tau$  ottenuti dall'analisi dati di  $\Delta T/T$  a T = 5 K per differenti energie di *Pump*.

## 4.4 "Coherent Phonons"

In un esperimento di *Pump and Probe*, ci si aspetta che l'eccitazione del campo elastico indotta dall'impulso laser si termalizzi mappandosi nel segnale di  $\Delta T/T$ , seguendo nel tempo un andamento esponenziale. Nelle curve presentate, inoltre, si può osservare la modulazione dell'esponenziale portata da un segnale sinusoidale contenente una o più frequenze. Tali modulazioni possono essere associate alle vibrazioni coerenti dei modi normali nel reticolo [11][19][22]. È noto, infatti, che il displacement degli atomi si manifesta come una modulazione della funzione dielettrica [16].

Definiamo la quantità e(t) come:

$$e(t) = f_{misurato}(t) - f_{fit}(t)$$

Una buona scelta della funzione interpolante rende mediamente nulla la funzione e(t). A testimonianza di ciò, si veda il grafico seguente, relativo alla misura a T = 5 K a  $E_1 = 763, 9 \mu J/cm^2$ .



Figure 4.9: Oscillazione coerente di  $\Delta T/T$  messa in luce dal grafico di e(t).

Applicando l'operazione Trasformata di Fourier Discreta a e(t) riusciamo a mettere in luce le frequenze dei modi normali. Si noti che si stanno considerando solamente tempi maggiori di 0, 6 ps, in modo da non inglobare in quest'analisi effetti residui di interferenza.

Il successivo grafico costituisce un esempio dell'andamento del modulo della DFT in funzione delle frequenze. L'energia di impulso di pompa considerata è la già citata  $E_1 = 763, 9 \, \mu J/cm^2$ .



Figure 4.10: Trasformata di Fourier Discreta di e(t) a  $E_1 = 763, 9 \, \mu J/cm^2$  e a  $T = 5 \, K$ .

Emerge dal grafico la presenza del modo normale con frequenza  $\nu_1=1,1\,THz.$ 

Il grafico sottostante vuole mettere in luce il rapporto di proporzionalità diretta emergente tra fluenza e  $|F(\nu_1)|$ .



Figure 4.11: Relazione lineare fra |F(1, 1THz)| e energia di pompa.

Per capire se il modo vibrazionale è legato alle dinamiche di superconduttività, risulta interessante considerarne la dipendenza dalla temperatura che illustriamo con il grafico successivo:



Figure 4.12: Dipendenza di |F(1, 1THz)| dalla temperatura. Il modo vibrazionale con frequenza 1, 1THz è presente soprattutto in fase superconduttiva.

A temperature maggiori di quella critica, è chiaro che il modo a frequenza  $\nu_1$  perde notevolmente d'importanza. Tenendo conto delle barre d'errore, infatti, al di sopra di  $T_c$ ,  $|F(\nu_1)|$  risulta

indicativamente costante, mentre al di sotto, varia di poco in un ampio intervallo di temperature. Asseriamo dunque un'interessante relazione fra il modo citato e la fase superconduttiva.

Dagli spettri si può osservare almeno un'altra frequenza interessante, ma il rapporto segnalerumore risulta troppo alto per chiarirne il valore. Ad alte fluenze, infatti, si nota un picco negli intorni di  $\nu_2 \simeq 4 THz$  che, però, finisce per confondersi con il rumore di fondo utilizzando il fascio di pompa a potenze minori.

L'idea in laboratorio è stata quella di procedere ad analisi di  $\Delta T/T$  considerando un numero di scansioni maggiore; il vantaggio assicurato è che il segnale risultante è affetto da un rumore inferiore a prima, lo svantaggio è che, per analisi così lunghe, la temperatura varia significativamente nel corso dell'opera.

Considerando 50 scansioni della corsia del traslatore effettuate in condizioni di  $T < T_c$  e calcolando la *Discrete Fourier Transform* degli scarti, si ottiene uno spettro in cui si evidenziano bene le due frequenze citate  $\nu_1$  e  $\nu_2$ .



Figure 4.13: Trasformata di Fourier Discreta di e(t) a  $E = 407, 4 \mu J/cm^2$ . L'elevato numero di scansioni del traslatore permette di evidenziare il modo vibrazionale  $\nu_2$  presente in fase superconduttiva.

Considerando metà altezza del picco, possiamo determinare in modo definitivo le frequenze dei modi normali normali presenti in fase superconduttiva:

$$\nu_1 = (1, 1 \pm 0, 1) THz$$

$$\nu_2 = (4, 4 \pm 0, 1) THz$$

La frequenza  $\nu_2$  è in buon accordo con quanto riportato nella letteratura relativa all'analisi di  $YBa_2Cu_3O_{6,9}$ . Essa è stato assegnata al modo normale di simmmetria  $A_{1g}$  che coinvolge puramente le vibrazioni off-plane degli atomi di Cu [15] [21] [22]. Valutiamo ora l'andamento della quantità  $|F(\nu_2)|$  in funzione della fluenza. Dal grafico che segue, emerge indicativamente ancora la proporzionalità diretta fra le due grandezze.



Figure 4.14: Relazione lineare fra  $|F(\nu_2)|$  e energia di pompa.

Sarebbe altrettanto interessante indagare il comportamento di  $|F(\nu_2)|$  rispetto alla temperatura. La componente del segnale in tale frequenza è, però, molto debole e la presenza di un rapporto rumore-segnale di 1 a 3 impedisce di produrre un'analisi quantitativa. Si suggerisce, quindi, di riprodurre l'esperimento a potenze maggiori utilizzando un grande numero di scansioni.

#### 4.5 Misure tramite photodetector differenziale

Le misure effettuate tramite photodetector differenziale sono affette da una grande presenza di rumore di fondo. La caratteristica forma di  $\Delta T/T$  emerge dopo aver mediato numerosissime scansioni del traslatore. A tal fine, occorre disporre di un setup molto stabile e di un sistema refrigerante che mantenga stazionaria la temperatura per molte ore. Nel nostro caso, questo si traduce nell'esigenza di avere una sorgente laser priva di fluttuazioni, un apparato non soggetto a sollecitazioni esterne e grande disponibilità di *He* liquido.

La modulazione sinusoidale del segnale si distingue difficilmente e questo compromette, in modo irrimediabile, l'analisi della coerenza dei modi normali eccitati. Mostriamo ora i dati raccolti in due situazioni per chiarire quanto spiegato:

1. a T = 70 K con 20 scansioni;

#### 2. a $T \simeq 78\,K$ con 200 scansioni.



Figure 4.15: Misure con photodetector differenziale: con un elevato numero di scansioni e lunghi tempi sperimentali si riesce ad attenuare il rumore e rendere chiara la forma di  $\Delta T/T$ . Sopra, si riporta la media di 20 scansioni del traslatore a 70 K; sotto la media di 200 scansioni a  $\simeq$  78 K.

## 5 Conclusioni

Le dinamiche ultraveloci nei superconduttori ad alta temperatura critica si prestano molto bene ad essere studiate tramite analisi spettroscopiche. Nel corso di questo lavoro, è stata applicata la tecnica *Pump* and *Probe* che permette di descrivere, con grande risoluzione temporale, l'evoluzione di proprietà ottiche in situazioni di non-equilibrio.

Il campione in esame è un film sottile di  $YBa_2Cu_3O_{6,9}$ , composto sintetico che manifesta l'interessante proprietà di essere un superconduttore fino ad una temperatura critica di 88–90 K. Non esiste, attualmente, un'interpretazione convincente di questo fenomeno che può essere descritto dalla Teoria della Superconduttività di Bardeen, Cooper e Schrieffer solamente fino a 20 - 30 K.

L'analisi spettroscopica è stata condotta misurando la variazione della trasmittività del film in seguito all'eccitazione indotta per mezzo di un impulso luminoso molto intenso. L'impulso di Pump ha una durata media di circa 80 fs e viene prodotto da un laser impulsato con un Repetition Rate di 250 KHz. Questo stimola nel materiale una forte eccitazione del reticolo cristallino e una perturbazione dell'equilibrio termico raggiunto tra coppie di Coopers e fononi ad alta frequenza in fase superconduttiva. La fotoeccitazione, secondo il modello di Rothwarf e Taylor descritto, viene assorbita in modo anaelastico fino alla completa ricombinazione delle coppie elettrone-elettrone presenti inizialmente. Il numero medio di quasi-particelle è dimostrato essere proporzionale alla variazione di trasmittività relativa  $\Delta T/T$  che ci permette, in tal modo, di quantificare il tempo di ricostituzione della fase superconduttiva. A questo fine, è utile il Probe, fascio impulsato generato allo stesso modo del Pump ma con un' intensità di circa un ordine di grandezza inferiore, che incide con un time-delay regolabile il film di  $YBa_2Cu_3O_{6.9}$ . Quando la coincidenza fra i due *beams*, oltre che spaziale, è anche temporale, si assiste a fenomeni di interferenza e tale configurazione dell'apparato sperimentale induce una scelta dell'origine dell'asse dei tempi. Variando il ritardo temporale fra i due, si misura la trasmittività del Probe per tempi successivi alla fotoeccitazione.

Le modalità di misura del segnale sono state due e si riconducono rispettivamente all'uso di:

- 1. un amplificatore lock-in;
- 2. un photodetector differenziale.

La prima tecnica ha dato buoni frutti e, grazie alla stessa, abbiamo presentato un'analisi quantitativa dei dati raccolti. È stato mostrato che il tempo di decadimento è differente fra fase superconduttiva (1, 1 ps), in cui avviene la ricombinazione delle quasi-particelle per creare coppie di Coopers, e fase normale (0, 5 ps), in cui il rilassamento è mediato da fononi che dissipano velocemente la loro energia nel substrato in modo anaelastico.

È stata evidenziata la presenza di due modi normali alle frequenze di 1,1THz e 4,4THz.

L'ampiezza delle loro oscillazioni coerenti è direttamente proporzionale all'energia dell'impulso di pompa e, grazie ad un elevato numero di scansioni del traslatore a differenti temperature, si è segnalata la forte depressione del modo a 1, 1 THz sopra la temperatura critica. Non è stato possibile condurre un analogo studio per il modo a frequenza più alta poichè questa componente si presenta ad una potenza spettrale ridotta rispetto alla prima e, a fluenze ridotte, rientra nel rumore di fondo.

La seconda modalità di misura non ha prodotto risultati altrettanto soddisfacenti. Il rumore che contraddistingue i segnali  $\Delta T/T$  raccolti in questo modo degrada la qualità dei dati e impedisce un'ampia analisi quantitativa. Migliorie del setup sperimentale (fluttuazioni del laser, rumore nel photodetector, disturbi esterni al laboratorio etc) sono da compiere per rendere fruibile la tecnica. Essa, grazie all'impiego di una scheda d'acquisizione da 1*Gsamples/s*, ha l'enorme potenzialità di distinguere le informazioni di ogni singolo impulso. Questo rende accessibile una considerevole statistica a fissato *time-delay* poichè per ogni ritardo si misurano insiemi di decine di miglialia di impulsi laser. Il calcolo di media, varianza e momenti superiori di questi *ensamble* statistici potrebbe rivelarsi di cruciale interesse per l'analisi dello stato quantistico della radiazione elettromagnetica prodotta.

Concludendo, l'obiettivo della tesi è stato raggiunto: sono stati caratterizzati i tempi di decadimento di una fotoeccitazione in un materiale superconduttivo ad alta temperatura critica riscontrando la presenza di due modi normali nella regione dei THz. Il passo successivo suggerito è il miglioramento della configurazione sperimentale per un'efficiente applicazione della tecnica basata sull'acquisizione differenziale a singolo impulso. Questo segnerebbe l'inizo della caratterizzazione degli stati quantistici della luce che ha interagito con le eccitazioni vibrazionali nel reticolo di  $YBa_2Cu_3O_{6,9}$  fuori dall'equilibrio.

## References

- F. Cilento, "Dinamiche Elettroniche Fotoindotte in Superconduttori ad Alta Temperatura Critica", Università cattolica del Sacro Cuore di Brescia, anno 2007.
- [2] J. Bardeen, L. N. Cooper, J.R. Schrieffer, "Theroy of Superconducitvity", Physical Review, 108,1175, anno 1957
- [3] G.Grosso, G. Pastori Parravicini, "Solid State Physics, Second Edition", Università di Pisa e Università di Pavia, anno 2014.
- [4] J. G. Bednorz, K. A. Müller, "Possible high-T<sub>c</sub> superconductivity in Ba La Cu O system", Zeitschrift fur Physik, 64, 189, anno1986
- [5] V. Kabanov, J. Demsar, D. Mihailovic, "Kinetics of a Superconductor Excited with a Femtosecond Optical Pulse", Jozef Stefan Institute (Ljubljana), anno 2005.
- [6] Giacomo Coslovich, "Disclosing the ultrafast dynamics of competing phases in hightemperature superconductors by time-resolved optical spectroscopy", Trieste, tesi di dottorato, anno 2010.
- [7] M. Esposito, "Design and experimental realization of a pulsed homodyne detector for optical quantum states characterization", Università degli Studi di Trieste, tesi di laurea magistrale, anno 2012.
- [8] D. Fausti, "Dinamiche elettroniche di superficie", Università di Brescia, anno 2002.
- J. H. Scofield, "A Frequency-Domain Description of a Lockin Amplifier", American Journal of Phisics, s 62 (2) 129-133, anno 1994.
- [10] M. Radovich, PSI Switzerland.
- [11] F. Randi, "Ricostruzione di stati quantistici mediante misura omodina impulsata applicata alla spettroscopia ultraveloce fuori equilibrio", Università degli Studi di Trieste, tesi di laurea magistrale, anno 2013.
- [12] M. Fox, "Quantum Optics. Oxford Master Series in Atomic, Optical, and Laser Physics", anno 2006.
- [13] Y. Kamihara et al. J. Am. Chem. Soc. 130, 3296, anno 2008.
- [14] A.F. Nebard et al., Nature 350,600, anno 2001.

- [15] D. Fausti, F. Parmigiani, F. Novelli, F. Cilento, G. Giovannetti, M. Capone, A. Avella, M. Radovic, "Dynamical coupling between off -plane phonons and in-plane electronic excitations in superconducting YBCO", anno 2014.
- [16] W. Albrecht, Th. Kruse and H. Kurz, "Time-resolved Observation of Coherent Phonons in Superconducting  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  Thin Films", The American Physical Society, 74.70.Vy, 78.30.Er. 78.47+p, Istitute of Semiconductors Electronics (Achen), anno 1992.
- [17] M. A. Beno, L. Soderholm et al., "Structure of the single phase high-temperature superconductor  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ ", American Istitute of Physics, Appl. Phys. Lett. 51(1), Argoone National Laboratory (Illinois), anno 1987.
- [18] V.V. Kabanov et al., Phys. Rev, B59,1497, anno 1999
- [19] B. Fredl, C. Thomsen, H. U. Habermeier and M. Cardona, "Intensity Anomalies of Raman-Active Phonons in the Superconducting State of YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub>", Solid State Communications, Vol.78, No. 4, pp 291-294, Max-Plank-Institut für Festkörperforshung (Stüttgart), anno 1991.
- [20] S.G. Han, Z. V. Vardeny, K. S. Wong, O. G. Symko, G. Koren, "Femtosecond Optical Detection of Quasiparticle Dyamics in High-T<sub>c</sub> YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> Superconducting Thin Films", Physical Review Letters, 74.70. Vy, 73.50.Gr, 78.47+p, University of Utah (Utah), anno 1990.
- [21] R. Henn, T. Strach, E. Schönherr and M. Cardona, "Isotope effects on the optical phonons of YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub>: Eigenvector and infrared charge determination", Physical Review B, Vol.55, no 5, Max-Plank-Institut für Festkörperforshung (Stüttgart), anno 1996.
- [22] A. I. Lobad and A. J. Taylor, "Coherent phonon generation mechanism in solids", Physical Review B, Vol.64, 78.47.+p,74,25.kc,74.72.-h,78.40.kc, Los Alamos Laboratory (New Mexico), anno 2001.

#### Ringraziamenti

Questa tesi è frutto di un intenso lavoro svolto nei laboratori T-Rex (Centro Elettra di Trieste) diretti dal Professore Fulvio Parmigiani che ringrazio per la costante supervisione e per avermi coinvolto in tempi record.

Intendo esprimere gratitudine, altresì, a tutti coloro che hanno reso possibile il mio inserimento in questo esperimento.

Un grandissimo grazie al mio Relatore e Professore Daniele Fausti che, con tutta la sua simpatia, mi ha saputo trasmettere grande passione, curiosità ed incoraggiamento nel corso della mia tesi, lasciandomi ampia libertà di azione e collaborazione in fase sperimentale. Grazie ai Dottorandi Martina Esposito e Francesco Randi che, con grande brillantezza e intelligenza, si sono rivelati preziosissimi e, nei loro ruoli, insostituibili. Come dimenticare le giornate trascorse con tutti loro allineando specchietti, lenti, polarizzatori e fibre ottiche con la mera illusione di... "trovare segnale!". Ad ogni modo, dopo infinite pause-caffè di riflessione, in cui non mi è mai stato permesso di offrire (colpa di Fausti), l'abbiamo avuta vinta.

Un ringraziamento a Grazia per il grande affetto e supporto datomi; con la sua energia e spontaneità mi ha ricordato soprattutto di non essere solo un aspirante fisico. Grazie a tutta la mia famiglia che, con grande costanza, mi ha seguito e stimolato in questo percorso lasciandomi carta bianca in ogni mia scelta, ascoltando pure qualche teorica digressione che ancora li sconvolge. Un ringraziamento va anche a tutta la famiglia "allargata", che, grazie a due "super generose" nonne, agli zii e alle zie, mi ha sempre distratto nei week-end con grande semplicità! Il saltuario lavoro nei vigneti e alcuni pranzi/cene con i fiocchi hanno sicuramente giovato alla mia salute. Sono stati tre anni di preparazione intensi, spesso di corsa, ma anche ricchi di periodi di relax e soddisfazioni. Non posso dimenticare di aver trovato un gruppo entusiasmante di colleghi che, in pochi mesi, sono diventati amiconi. Con il giusto spirito, abbiamo macinato insieme difficoltà, ostacoli, pagine di conti ed esami, rimanendo sempre in prima linea per scappare a Barcola, a Sistiana, al campo del Bor e al bar.

Uno dei più forti tributi va sicuramente agli amici di sempre che, dopo anni di divertimento, di calci a un pallone e di ragazzate, mi vedono finalmente conquistare questa prima importante laurea.

Ed è proprio con tutti loro che voglio festeggiare.

Francesco