

Università degli Studi di Trieste

DIPARTIMENTO DI FISICA Corso di Laurea in Fisica

Tesi di Laurea

Studio di un campione di $CuGeO_3$ in cavità ottica in regime di accoppiamento forte luce-materia

Relatore: Prof. Daniele Fausti

Correlatori: Dott.ssa Francesca Giusti Dott. Giacomo Jarc Laureando: Michele Matteucci

Anno Accademico 2019/2020

Indice

| Presentazione e obiettivi | | | 1 |
|---------------------------|-----------------------------------|---|--|
| 1 | Intr 1.1 1.2 | oduzione all'accoppiamento luce-materiaCavità otticheRegimi di accoppiamento1.2.1Accoppiamento Debole1.2.2Accoppiamento Forte | 3 3 6 6 7 |
| 2 | Il re 2.1 2.2 | Segime di Accoppiamento ForteApproccio classico | 12 12 16 |
| 3 | Ap 3.1 3.2 | Darato sperimentale Generazione del campo TeraHertz | 18 19 20 |
| 4 | Ris 4.1 4.2 4.3 | Itati ottenutiRegime di separazione4.1.1Campione4.1.2Cavità vuotaRegime di accoppiamentoVerifica del regime di Accoppiamento Forte4.3.1Approccio classico4.3.2Approccio quantistico | 24 24 25 28 35 35 38 |
| Co | Conclusioni | | |
| A | Appendice A Il modello di Lorentz | | |
| Bibliografia | | | 49 |

Presentazione e obiettivi

Il contesto in cui è stato svolto il presente lavoro di tesi è l'indagine delle proprietà ottiche di sistemi quantistici fortemente accoppiati. L'obiettivo della tesi è lo studio del regime di Accoppiamento Forte del sistema costituito da un campione di CuGeO₃ (Germanato di Rame) posto in risonanza con la luce all'interno di una cavità ottica.

Da un punto di vista sperimentale, per raggiungere questo scopo si sono dapprima caratterizzate le componenti in regime disaccoppiato, verificando la conformità dei risultati alle previsioni. In seguito è stata analizzata l'interazione del sistema in condizioni di risonanza e si è tentato di determinare se i fenomeni osservati siano effettivamente riconducibili all'Accoppiamento Forte.

La prima parte della tesi è dedicata all'illustrazione dei meccanismi fondamentali che regolano le cavità ottiche e il fenomeno dell'Accoppiamento Forte. È stato posto l'accento sulle differenze che vi sono tra questo regime e quello di Accoppiamento Debole: mentre il primo comporta una modifica di autostati e autovalori di energia rispetto a un sistema disaccoppiato, nel secondo solo i tempi di decadimento degli stati subiscono una variazione.

In seguito viene raffinata la descrizione teorica del sistema studiato, utilizzando due diversi approcci. Il primo, di tipo classico, consente di calcolare lo spettro di trasmissione del campione di CuGeO₃ posto in cavità. Il secondo, invece, fornisce una descrizione a tutto tondo del medesimo fenomeno da un punto di vista quantistico.

Più avanti, si descrivono brevemente le tecniche sperimentali che consentono la produzione di impulsi ottici nella regione del TeraHertz. Ciò è funzionale all'indagine del regime di Accoppiamento che s'instaura fra una cavità ottica e un campione di Germanato di Rame, i cui stati vibrazionali possono essere eccitati se illuminati con luce a queste frequenze.

Si presentano, infine, le misure eseguite. In primo luogo, si sono osservate le risposte alle sollecitazioni di campo elettrico del campione e della cavità ottica come componenti separate. Quindi si è passati all'indagine del sistema accoppiato, analizzando gli effetti della risonanza. Per stabilire il raggiungimento del regime di Accoppiamento Forte, si sono confrontate le misure con le previsioni dei due modelli teorici descritti in precedenza. Da ultimo, si è anche discussa una possibile influenza dei parametri di costruzione della cavità (in particolare, il fattore di merito) sul regime di accoppiamento.

Nella conclusione si riassumono i risultati ottenuti.

Capitolo 1

Introduzione all'accoppiamento luce-materia

Costruire un sistema in cui un materiale è *accoppiato*, in cavità, alla luce significa introdurre delle condizioni al contorno per il campo elettrico: questo causa un cambiamento nelle modalità d'interazione fra luce e materia. In particolare, l'inserimento di un materiale in una cavità ottica può comportare l'alterazione delle proprietà statiche e dinamiche del sistema.

Si consideri, ad esempio, un fotone che interagisce con un materiale nel vuoto: esso avrà una certa probabilità di essere assorbito e poi riemesso¹. Se il fotone, invece, interagisce con il materiale posto in cavità, ha la possibilità di venire assorbito e riemesso più volte: le probabilità che ciò accada ne risulteranno modificate.

In questo Capitolo si introduce il concetto di cavità ottica, dispositivo fondamentale per la costruzione di sistemi accoppiati luce-materia. In un secondo momento, inoltre, si opera una distinzione tra i due principali regimi di Accoppiamento luce-materia: quello Debole (in cui solo i tempi di decadimento degli stati eccitati sono modificati rispetto a quelli del materiale in uno spazio libero da vincoli sul campo elettrico) e quello Forte (in cui si modificano sia gli autostati, sia gli autovalori di energia).

1.1 Cavità ottiche

Una cavità ottica è un sistema costituito da due specchi (cioè superfici di materiale conduttore) posti l'uno di fronte all'altro, fra i quali viene immessa della luce. Dal punto di vista fisico, questo tipo di costruzione ha lo scopo

 $^{^1{\}rm O},$ equivalentemente, ci sarà una certa probabilità che gli stati del materiale vengano eccitati e diseccitati.

di introdurre delle condizioni al contorno per il campo elettrico presente all'interno, così da poterne sostenere solo alcuni modi. Se si inserisce in una cavità un materiale che assorbe luce su frequenze simili a quelle dei modi sostenuti, si ottiene un sistema risonante.

La luce immessa in una cavità compie ripetuti cicli di riflessioni: a ogni riflessione, per via delle condizioni al contorno, gli specchi conferiscono al campo una fase. Di conseguenza, si genera interferenza fra campo incidente e riflesso; gli unici modi sostenuti sono quelli per cui l'interferenza è costruttiva, ossia per cui

$$\frac{\lambda}{2}n = L, \ n = 1, 2, \dots,$$
 (1.1)

dove λ è la lunghezza d'onda del modo considerato e L è la distanza tra i due specchi. Per quanto riguarda le frequenze, si avrà

$$\omega = n \,\omega_c, \ n = 1, 2, \dots, \tag{1.2}$$

dove ω è la frequenza del modo considerato e $\omega_c = \frac{\pi c}{L}$, con c velocità della luce nel vuoto.

In altri termini, gli specchi di materiale conduttore impongono che il campo elettrico sia nullo agli estremi della cavità. Gli unici modi in grado di soddisfare questo requisito sono quelli caratterizzati dalle Eqn. (1.1) e (1.2).

Tipicamente, gli specchi di una cavità non sono completamente riflettenti e questo comporta una perdita di energia per il sistema. Quantificare questa perdita è utile per determinare il tempo di vita medio di un fotone all'interno della cavità², e può essere fatto con il fattore di merito Q. Esso è definito proporzionale al rapporto tra l'intensità della radiazione presente all'interno della cavità in un certo istante, e la perdita di intensità per ogni ciclo ottico³:

$$Q = \omega_c \frac{I(t)}{-\frac{dI(t)}{dt}}.$$
(1.3)

Risolvendo l'equazione differenziale si trova:

$$I(t) = I_0 e^{-\frac{\omega_c}{Q}t}, \qquad (1.4)$$

dove I_0 è l'intensità all'istante iniziale. Si può definire, infine, il tempo di vita medio del fotone all'interno della cavità:

 $^{^2\}mathrm{I.}$ e. la probabilità che il fotone ha di essere trasmesso all'esterno.

³In un ciclo ottico la luce percorre una volta la distanza tra i due specchi, quindi viene riflessa e percorre all'indietro la medesima distanza. Al limite per cui un ciclo ottico è molto veloce si può parlare di perdita di energia per unità di tempo: $\frac{dI(t)}{dt}$.

$$\tau \coloneqq \frac{Q}{\omega_c} \,. \tag{1.5}$$

Risulta utile, inoltre, cercare un'espressione generica per la curva $I(\omega),$ proporzionale all'energia trasmessa all'esterno della cavità. Occorre dunque osservare che

$$I(t) = |E(t)|^2 \Rightarrow E(t) = E_0 e^{i\omega t} e^{-\frac{\omega c}{2Q}t}; \qquad (1.6)$$

il quadrato della Trasformata di Fourier di un esponenziale ha una forma lorentziana (Fig. (1.1)):



Figura 1.1: Spettro di potenza lorentziano.

$$I(\omega) \propto \frac{1}{(\omega_c - \omega)^2 + (\frac{\omega_c}{2O})^2}.$$
(1.7)

La relazione tra le quantità caratteristiche di dominio dei tempi e dominio delle frequenze è

$$\tau = \frac{1}{\delta\omega_c}\,,\tag{1.8}$$

dove $\delta \omega_c$ rappresenta la larghezza a metà altezza della curva lorentziana. Combinando le Eqn. (1.5) e (1.8) si trova:

$$Q = \frac{\omega_c}{\delta\omega_c} \,. \tag{1.9}$$

in base alla quale il fattore di merito dà informazioni sull'allargamento del picco intorno al suo massimo.

1.2 Regimi di accoppiamento

In questa Sezione si distinguono i due principali regimi di accoppiamento luce-materia.

1.2.1 Accoppiamento Debole

Si consideri una radiazione elettromagnetica che interagisce nel vuoto con un materiale, eccitandone gli stati. L'Accoppiamento Debole è un fenomeno per cui solo i tempi di decadimento degli stati del materiale sono diversi rispetto al caso dell'interazione nel vuoto⁴.

Un importante contesto in cui si manifesta l'Accoppiamento Debole è l'*effetto Purcell* [1]: un emettitore posto in risonanza con della luce in una cavità ottica ha tempi di emissione più brevi che nel vuoto. Al contrario, se i due oggetti sono sufficientemente lontani da una condizione di risonanza, i tempi di emissione saranno più lunghi. In particolare, se si utilizza un approccio perturbativo per il calcolo delle probabilità di emissione, si può trovare, tramite la Regola d'Oro di Fermi⁵ [3]:

$$\frac{\tau_0}{\tau_c} \propto Q \frac{\Delta\omega_c}{(\omega_0 - \omega_c)^2 + (\Delta\omega_c)^2}, \qquad (1.10)$$

dove:

- τ_0 e τ_c indicano rispettivamente i tempi di vita medi di uno stato eccitato nel vuoto e in cavità;
- $\omega_0 \in \omega_c$ indicano rispettivamente le frequenze di risonanza dell'emettitore e della cavità;

 $^{^4\}rm \dot{E}$ necessario che, rispetto all'interazione nel vuoto, non cambino anche gli stati e le energie del materiale. In tal caso, infatti, il regime del sistema sarebbe quello di Accoppiamento Forte.

⁵La Regola d'Oro di Fermi consente di calcolare i tempi di decadimento degli autostati di un sistema nell'ambito della Teoria delle Perturbazioni [2]. Per poterla applicare è necessario che l'Hamiltoniana di tale sistema sia esprimibile come la somma di un'Hamiltoniana H_0 , con diagonalizzazione nota, e di una di *perturbazione*, che cioè rappresenti una variazione di energia piccola rispetto a H_0 .

- Q è il fattore di merito della cavità;
- $\Delta \omega_c$ è la distanza in frequenza tra due modi sostenuti dalla cavità.

Si osservi che è possibile diminuire τ_c aumentando il fattore di merito della cavità, oppure "sintonizzandola" in modo tale che sia $\omega_c \simeq \omega_0$. In Fig. (1.2) è riportato un risultato sperimentale di osservazione dell'effetto Purcell [4]. Sono rappresentate le intensità di fotoluminescenza misurate in funzione del tempo per *Quantum Dots* di InGaAs in tre configurazioni diverse: dentro una nanocavità in condizioni di risonanza; dentro una nanocavità condizioni di non risonanza; nello spazio libero. Si nota che la risonanza con la cavità ha l'effetto di diminuire i tempi di decadimento degli stati eccitati.



Figura 1.2: Fotoluminescenza misurata in funzione del tempo per *Quantum Dots* di InGaAs nel vuoto (verde) e in cavità, per condizioni di risonanza (rosso) e fuori risonanza (blu) [4].

1.2.2 Accoppiamento Forte

Un sistema in cui la luce interagisce con la materia è in regime di Accoppiamento Forte se i suoi autostati e autovalori di energia sono diversi rispetto a quelli che si avrebbero per la stessa interazione nel vuoto.

Al fine di trovare un'espressione (analitica ed esatta) per gli autostati e gli autovalori di un sistema accoppiato, si parte valutando l'energia potenziale elettrostatica:

$$U = -\mathbf{d} \cdot \mathbf{E} \,. \tag{1.11}$$

Nel caso di un materiale in cavità, \mathbf{d} ed \mathbf{E} rappresentano, rispettivamente, il dipolo elettrico con cui si schematizzano gli emettitori e il campo presente in cavità. Quindi, quantizzando l'energia in Eqn. (1.11), si può trovare l'Hamiltoniana, che nel caso più generale deve tener conto della presenza di M fotoni e N emettitori in cavità, oltre che delle loro interazioni:

$$H = \hbar\omega_c \sum_{j=1}^M a_j^{\dagger} a_j + \hbar\omega_0 \sum_{j=1}^N b_j^{\dagger} b_j + \hbar g \sum_{j=1}^M \sum_{k=1}^N (a_j b_k^{\dagger} + a_j^{\dagger} b_k) \,. \tag{1.12}$$

In questa scrittura:

- a_j^{\dagger} e a_j rappresentano, rispettivamente, gli operatori di creazione e distruzione dei fotoni in cavità;
- b_k^{\dagger} e b_k rappresentano, rispettivamente, gli operatori di creazione e distruzione relativi alle eccitazioni degli emettitori;
- $\omega_c \in \omega_0$ sono gli autovalori di energia (in unità di \hbar) dei due sistemi disaccoppiati, ossia ω_c è la frequenza di risonanza della cavità e ω_0 la frequenza di risonanza del materiale;
- g dipende dalla probabilità di emissione dell'atomo ed è detto costante di accoppiamento (ha le dimensioni di una frequenza).

Nel presente lavoro di tesi, tuttavia, si sono sempre considerati regimi lineari, in cui cioè è presente un solo quanto d'eccitazione, sia esso nella cavità (sotto forma di fotone) o in uno stato del materiale. Ciò si traduce nella semplificazione della somma sugli operatori $a_j e a_j^{\dagger} e$ nell'eliminazione dei termini doppiamente dagati. Di conseguenza, la dimensione dello spazio di Hilbert in cui si opera viene ridotta da M + N a N + 1 e la Eqn. (1.12) prende la seguente forma [4] [5]:

$$H = \hbar \omega_c a^{\dagger} a + \hbar \omega_0 \sum_{j=1}^{N} b_j^{\dagger} b_j + \hbar g \sum_{j=1}^{N} (a b_j^{\dagger} + a^{\dagger} b_j) .$$
(1.13)

Ora, si può dimostrare che l'operatore numero totale, $n = a^{\dagger}a + \sum_{j=1}^{N} b_{j}^{\dagger}b_{j}$, commuta con l'Hamiltoniana in Eqn. (1.13). Per questo è possibile scrivere il generico stato $|\psi\rangle$ del sistema come combinazione lineare di stati con ugual numero di eccitazioni:

$$|\psi\rangle = \alpha |G,1\rangle + \sum_{j=1}^{N} c_j |e_j,0\rangle , \qquad (1.14)$$

dove:

- $|G,1\rangle$ è lo stato in cui un'eccitazione è presente in cavità, mentre tutti gli emettitori del materiale si trovano nello stato fondamentale;
- $|e_j, 0\rangle$ è lo stato in cui solo l'emettitore *j*-esimo è eccitato e non è presente alcun fotone in cavità;
- $\alpha \in c_j$ sono coefficienti che devono consentire a $|\psi\rangle$ di rispettare la condizione di normalizzazione.

Facendo agire su $|\psi\rangle$ l'Hamiltoniana in Eqn. (1.13) e imponendo le condizioni di normalizzazione, è possibile ottenere le espressioni dei nuovi autostati accoppiati. Essi prendono il nome di *Upper Polariton* e *Lower Polariton* e, come si può vedere dall'equazione seguente, sono combinazioni lineari degli autostati della cavità e del materiale:

$$|UP\rangle = \chi_c(\omega_c, \omega_0) |G, 1\rangle + \chi_0(\omega_c, \omega_0) \sum_{j=1}^N |e_j, 0\rangle ,$$

$$|LP\rangle = \chi_c(\omega_c, \omega_0) |G, 1\rangle - \chi_0(\omega_c, \omega_0) \sum_{j=1}^N |e_j, 0\rangle .$$

(1.15)

 $\chi_c(\omega_c, \omega_0)$ e $\chi_0(\omega_c, \omega_0)$ sono coefficienti che dipendono dalle frequenze di risonanza dei sistemi disaccoppiati. I rispettivi autovalori sono

$$\omega_{UP} = \frac{\omega_c + \omega_0}{2} + \sqrt{Ng^2 + \left(\frac{\omega_c - \omega_0}{2}\right)^2},$$

$$\omega_{LP} = \frac{\omega_c + \omega_0}{2} - \sqrt{Ng^2 + \left(\frac{\omega_c - \omega_0}{2}\right)^2}.$$
(1.16)

È importante notare che la base di autostati dell'Hamiltoniana del sistema accoppiato deve avere N + 1 elementi: i rimanenti N - 1 sono i cosiddetti Dark States:

$$|DS\rangle = \sum_{j=1}^{N} c_j |e_j, 0\rangle , \qquad (1.17)$$

con autovalore di energia $\hbar\omega_0$. Si può dimostrare che, nell'ambito della presente trattazione, questi stati hanno probabilità nulla di assorbire o emettere fotoni; per questo, essi sono invisibili alla spettroscopia lineare.

Dalla Fig. (1.3) si può notare che, in condizioni di non risonanza ($\omega_c \neq \omega_0$), gli autovalori di energia tendono a quelli del sistema disaccoppiato per grandi $|\omega_c - \omega_0|$. In condizioni di risonanza ($\omega_c \simeq \omega_0$), invece, la differenza

tra ciascuna curva e gli autovalori disaccoppiati è massima e si definisce lo $Splitting\ di\ Rabi^6$



$$\Omega_R \coloneqq (\omega_{UP} - \omega_{LP})|_{\omega_c = \omega_0}.$$
(1.18)

Figura 1.3: Autovalori di energia (in unità di \hbar) degli stati polaritonici in funzione di $\Delta = \omega_c - \omega_0$; Splitting di Rabi evidenziato.

In Fig. (1.4), inoltre, è riportato un esempio di spettro trasmissione per un sistema fortemente accoppiato alla risonanza (cioè l'immagine è un "taglio" della Fig. (1.3) al punto $\Delta = 0$). Si osserva che l'energia trasmessa è massima in corrispondenza dei due autovalori polaritonici. Per $\omega = \omega_0$, al contrario, la curva ha un minimo assoluto: gli stati con questo autovalore di energia, cioè i Dark States, non possono essere osservati con tecniche di spettroscopia lineare.

⁶In unità di \hbar .



Figura 1.4: In blu: spettro di trasmissione di un generico sistema risonante in funzione di $\Delta = \omega_c - \omega_0$. In verde: spettro di trasmissione di una cavità vuota con $\omega_c = \omega_0$.

Capitolo 2

Il regime di Accoppiamento Forte

In questo Capitolo si delineano due diversi approcci per la descrizione delle proprietà ottiche di un complesso costituito da un materiale in una cavità ottica. Essi verranno poi utilizzati per descrivere il regime di un campione di CuGeO₃ posto in cavità.

Il primo approccio, di tipo classico, è il metodo di *Transfer Matrix*, che consente di trovare lo spettro di trasmissione di un sistema costituito da più strati (i. e. campione in cavità), in dipendenza da parametri sperimentali noti. Occorre prestare attenzione nell'applicare una tecnica classica alla descrizione di un fenomeno quantistico, in quanto la trattazione, per sua stessa natura, non potrà essere generale. In questo caso, il metodo di *Transfer Matrix* è applicabile solo in regime lineare, ossia di accoppiamento fra lo stato fondamentale della cavità e sistema molecolare con una sola eccitazione.

Il secondo approccio, invece, è di tipo quantistico. Esso è in grado di giustificare uno spettro di trasmissione continuo in contesto quantistico (nel quale normalmente si ha a che fare con autovalori di energia discreti) e fornisce un criterio quantitativo per l'identificazione del regime di Accoppiamento Forte.

2.1 Approccio classico

In questa Sezione si interpreta il campione in cavità come un sistema costituito da molti strati paralleli di materiali diversi, e se ne cercano gli spettri di trasmissione con approccio classico [3]. Per fare ciò, occorre risolvere e disaccoppiare le equazioni di Fresnel per un sistema a N strati con le condizioni al contorno imposte sui campi dalla cavità. Si comincia dal caso N = 1per poi generalizzare. Sistemi a uno strato Le equazioni di Maxwell, in assenza di cariche e correnti libere (i. e. materiali dielettrici o semiconduttori), possono essere scritte nella forma

$$\begin{cases} \boldsymbol{\nabla} \cdot \mathbf{D} = 0 \\ \boldsymbol{\nabla} \cdot \mathbf{B} = 0 \\ \boldsymbol{\nabla} \times \mathbf{E} = -\frac{1}{c} \partial_t \mathbf{B} \\ \boldsymbol{\nabla} \times \mathbf{B} = -\frac{1}{c^2} \partial_t \mathbf{D} \end{cases}, \qquad (2.1a)$$

 con

$$\mathbf{D} = \varepsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P} = \varepsilon \mathbf{E} \tag{2.1b}$$

(valida per mezzi lineari, ossia in cui $\mathbf{P} \propto \mathbf{E}$). Se si considera un campo elettrico della forma $\mathbf{E}(\mathbf{r},t) = \mathbf{E}_0 e^{i(\mathbf{k}\cdot\mathbf{t}-\omega t)}$, e si utilizzano la prima, la terza e la quarta delle Eqn. (2.1a) e la relazione $\nabla \times \nabla \times \mathbf{A} = \nabla(\nabla \cdot \mathbf{A}) - \nabla^2 \mathbf{A}$ (valida per qualunque campo vettoriale), si può poi ottenere:

$$\nabla^2 \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = -k^2 \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) \,. \tag{2.2}$$

In un contesto unidimensionale e per un istante fissato (ad esempio t = 0), la Eqn. (2.2) diventa (nel caso di un'onda elettromagnetica che si propaga lungo l'asse z)

$$\partial_z^2 E(z) = -k_0^2 n^2 E(z) \,, \tag{2.3}$$

dove $k_0 = k/n$ è il vettore d'onda di E(z) nel vuoto; n, invece, è l'indice di rifrazione all'interno del materiale ed è omogeneo su ogni piano xy, ma può dipendere da z.

La soluzione generale della Eqn. (2.3) è già a portata di mano:

$$E(z) = A^{+}e^{ikz} + A^{-}e^{-ikz}$$
(2.4)

(con A^+ e A^- coefficienti da determinarsi). Per il campo magnetico, invece, si può impostare un ragionamento del tutto analogo partendo dalle Eqn. (2.1), ottenendo:

$$B(z) = nA^{+}e^{ikz} + nA^{-}e^{-ikz}.$$
(2.5)

Ora, immaginando di porsi all'interfaccia tra due mezzi con indici di rifrazione n_1 (a sinistra) e n_2 (a destra), con luce proveniente da sinistra, le condizioni di raccordo¹ (z = 0) danno

¹Esse riguardano le componenti dei campi parallele al piano di incidenza; di conseguenza possono essere utilizzate, nella forma presentata, solo per luce che incide normalmente. Questo non risulta un problema perché nell'esperimento è stata usata proprio luce a incidenza normale.

$$A_1^+ + A_1^- = A_2^+ n_1(A_1^+ - A_1^-) = n_2 A_2^+,$$
(2.6)

dove A_1^+ , A_1^- e A_2^+ possono essere interpretati, rispettivamente, come l'ampiezza della luce incidente, riflessa e trasmessa. È ora immediato ricavare il coefficiente di riflessione

$$r = \frac{A_1^-}{A_1^+} = \frac{n_1 - n_2}{n_1 + n_2} \tag{2.7}$$

e il coefficiente di trasmissione

$$t = \frac{A_2^+}{A_1^+} = \frac{2n_1}{n_1 + n_2}.$$
 (2.8)

Infine, si possono scrivere i coefficienti per l'energia riflessa

$$R = |r|^2 \tag{2.9}$$

e per l'energia trasmessa

$$T = \frac{n_2}{n_1} |t|^2 \,. \tag{2.10}$$

Sistemi a molti strati Nel caso si vogliano calcolare i coefficienti di riflessione e trasmissione per sistemi costituiti da più strati, occorre applicare, una volta per ogni interfaccia, i passaggi descritti nel paragrafo precedente. L'iterazione di questa procedura può essere svolta con formalismo matriciale.

Si consideri il vettore $\Phi(z)$ così definito:

$$\Phi(z) \coloneqq \begin{pmatrix} E(z) \\ cB(z) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} E(z) \\ -\frac{i}{k_0} \partial_z E(z) \end{pmatrix}.$$
(2.11)

Sia ora M_j la Matrice di Trasferimento attraverso lo strato *j*-esimo (di lunghezza a_j), definita in modo tale che

$$M_j \Phi(z = z_j) = \Phi(z = z_j + a_j),$$
 (2.12)

dove $z_j = \sum_{l=0}^{j-1} a_l \pmod{a_0} = 0$ è la coordinata z alla quale comincia lo strato *j*-esimo. Nel caso di un'unica interfaccia, ad esempio, si può facilmente verificare, per sostituzione delle Eqn. (2.4) e (2.5) nella Eqn. (2.12), che²

²Si tralasci, al momento, l'indicizzazione su j.

$$M = \begin{pmatrix} \cos(ka) & \frac{i}{n}\sin(ka)\\ in\sin(ka) & \cos(ka) \end{pmatrix}.$$
 (2.13)

Nel caso di N strati, invece, si ha:

$$M = \prod_{j=1}^{N} M_j \,, \tag{2.14}$$

dove ogni matrice M_j è del tipo visto nell'Eqn. (2.13) e dipende dalle quantità n_j e $k_j = n_j k_{0,j}$, caratteristiche dello strato *j*-esimo.

Se un sistema costituito da N strati si trova fra due mezzi di indice di rifrazione n_l (mezzo a sinistra) e n_r (mezzo a destra), la Eqn. (2.12) assume la forma

$$M\begin{pmatrix} 1+r_{tot}\\ n_l(1-r_{tot}) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} t_{tot}\\ n_r t_{tot} \end{pmatrix}, \qquad (2.15)$$

dove r_{tot} e t_{tot} rappresentano rispettivamente i coefficienti di riflessione e trasmissione complessivi del sistema. Svolgendo il prodotto righe per colonne ed eguagliando le componenti dei due vettori risultanti si ottengono le espressioni

$$r_{tot} = \frac{n_r M_{11} + n_l n_r M_{12} - M_{21} - n_l M_{22}}{M_{21} - n_l M_{22} - n_r M_{11} + n_l n_r M_{12}}$$
(2.16)

е

$$t_{tot} = 2n_l \frac{M_{12}M_{21} - M_{11}M_{22}}{M_{21} - n_l M_{22} - n_r M_{11} + n_l n_r M_{12}}.$$
 (2.17)

Da qui, secondo le Eqn. (2.9) e (2.10), si ricavano infine gli spettri di riflessione e trasmissione in funzione della frequenza³:

$$R(\omega) = |r_{tot}(\omega)|^2, \qquad (2.18)$$

$$T(\omega) = \frac{n_r}{n_l} |t_{tot}(\omega)|^2.$$
(2.19)

³Poiché, naturalmente, per ogni strato j si ha $n_j = n_j(\omega).$

2.2 Approccio quantistico

In questa Sezione si discute un criterio quantitativo per distinguere il regime di Accoppiamento Debole da quello di Accoppiamento Forte. Si affronta, inoltre, il problema di una spiegazione quantistica al cosiddetto allargamento di riga, ossia alla formazione di uno spettro di trasmissione continuo intorno agli autovalori previsti.

L'allargamento di riga può essere giustificato analizzando l'evoluzione temporale degli autostati del sistema accoppiato, o, equivalentemente, dei suoi operatori. Per far questo, si possono scrivere le seguenti equazioni differenziali semiclassiche accoppiate:

$$\begin{cases} \frac{d}{dt}[a(t)] = -i\omega_c a(t) - \delta\omega_0 a(t) + g\sqrt{N}b(t) + F_a \\ \frac{d}{dt}[b(t)] = -i\omega_0 b(t) - \delta\omega_c b(t) - g\sqrt{N}a(t) + F_b \end{cases},$$
(2.20)

dove $\delta\omega_0$ e $\delta\omega_c$ indicano gli allargamenti spettrali dei sistemi disaccoppiati (rispettivamente campione e cavità) e F_a e F_b garantiscono la conservazione delle regole di commutazione bosoniche. Nell'impostare le Eqn. (2.20), si è considerato che la derivata dell'operatore a(t) deve comprendere:

- un termine di evoluzione libera $-i\omega_c a(t)$;
- un termine che rappresenti la perdita di energia, come $-\delta\omega_0 a(t)$;
- un termine di accoppiamento $g\sqrt{Nb(t)}$.

L'equazione per b(t) è stata impostata in modo simmetrico ed è identica per ogni emettitore b_j .

La soluzione generale della Eqn. (2.20) è del tipo

$$\begin{cases} a(t) = A_{+}e^{-i\omega_{+}t} + A_{-}e^{-i\omega_{-}t} \\ b(t) = B_{+}e^{-i\omega_{+}t} + B_{-}e^{-i\omega_{-}t} \end{cases},$$
(2.21)

dove A_{\pm} e B_{\pm} sono coefficienti, in generale complessi, che dipendono dalle frequenze degli stati disaccoppiati e dal valore degli operatori all'istante iniziale; inoltre

$$\omega_{\pm} = \tilde{\omega}_{UP/LP} = \frac{\omega_c + \omega_0}{2} - \frac{i(\delta\omega_c + \delta\omega_0)}{2} + \frac{\sqrt{\left(\frac{\omega_c - \omega_0 - i(\delta\omega_c - \delta\omega_0)}{2}\right)^2 + Ng^2}}{\frac{1}{2}}.$$
(2.22)

Le frequenze complesse $\tilde{\omega}_{UP/LP}$ sono gli autovalori corrispondenti agli autostati di un'Hamiltoniana modificata, rispetto a quella in Eqn. (1.12), in modo semiclassico:

$$H = (\omega_c - i\delta\omega_c)a^{\dagger}a + (\omega_0 - i\delta\omega_0)\sum_{j=1}^N b_j^{\dagger}b_j + g\sum_{j=1}^N (ab_j^{\dagger} + a^{\dagger}b_j).$$
(2.23)

Si può trovare, inoltre, che

$$\left\langle a^{\dagger}(t)a(t)\right\rangle \propto e^{-(\delta\omega_0+\delta\omega_c)t}\sin\left[\frac{\tilde{\omega}_{UP}-\tilde{\omega}_{LP}}{2}t\right]\sin\left[\frac{(\tilde{\omega}_{UP}-\tilde{\omega}_{LP})^*}{2}t\right]$$
. (2.24)

La dipendenza esponenziale di *a* dal tempo si traduce, nel dominio delle frequenze, in un allargamento spettrale (dipendente da $\delta\omega_0 + \delta\omega_c$) intorno agli autovalori puri definiti dalla Eqn. (1.16); la dipendenza sinusoidale, invece, determina le cosiddette Oscillazioni di Rabi.

Nel caso in cui $\delta \omega_c = \delta \omega_0 = 0$, la Eqn. (2.22) si riconduce alla Eqn. (1.16). In condizioni di risonanza ($\omega_c = \omega_0$), invece, si può definire lo Splitting di Rabi complesso⁴, in analogia con la Eqn. (1.18):

$$\tilde{\Omega}_R \coloneqq (\tilde{\omega}_{UP} - \tilde{\omega}_{LP})|_{\omega_c = \omega_0} = \sqrt{Ng^2 - \left(\frac{\delta\omega_c - \delta\omega_0}{2}\right)^2}.$$
(2.25)

Da qui, un criterio quantitativo per definire il regime di Accoppiamento forte. Se infatti si verifica

$$4Ng^2 > (\delta\omega_c - \delta\omega_0)^2, \qquad (2.26)$$

allora $\tilde{\Omega}_R$ è una quantità reale e misurabile. Al contrario, se

$$4Ng^2 < (\delta\omega_c - \delta\omega_0)^2, \qquad (2.27)$$

allora $\tilde{\Omega}_R$ è una quantità puramente immaginaria⁵ e dunque non misurabile. Nel primo caso si è in regime di Accoppiamento Forte, nel secondo caso in regime di Accoppiamento Debole, in quanto non v'è Splitting osservabile tra i due autovalori.

E interessante osservare che la condizione di accoppiamento in cui ci si trova è determinata dalla *differenza* tra gli allargamenti spettrali dei due sistemi disaccoppiati. Per questo, in presenza di un valore sufficientemente grande di $\delta\omega_0$ è possibile raggiungere l'Accoppiamento Forte anche con bassi valori di Q (cfr. Eqn. (1.9)).

⁴In unità di \hbar .

⁵Ovvero, $\operatorname{Re}(\tilde{\Omega}_R) = 0$.

Capitolo 3

Apparato sperimentale

Nei Capitoli precedenti si è analizzata, da un punto di vista teorico, la fisica dell'Accoppiamento luce-materia. L'obiettivo di questo Capitolo, invece, è la descrizione delle tecniche sperimentali che consentono l'indagine di un sistema reale, costituito da un campione di CuGeO₃ (Germanato di Rame) in cavità.

In primo luogo, occorre generare degli impulsi di luce con frequenze dell'ordine del TeraHertz. Ciò, infatti, è necessario per studiare l'Accoppiamento fra una cavità che sostenga tali modi del campo elettrico e un campione di Germanato di Rame, i cui stati vibrazionali vengono eccitati se illuminati con luce a queste frequenze¹. Per lo stesso motivo, inoltre, bisogna utilizzare una cavità ottica di lunghezza regolabile, anch'essa con frequenze di risonanza (variabili) nella regione del TeraHertz.

In secondo luogo, è necessario mettere a punto un metodo per la misura del campo in uscita dalla cavità. Dall'analisi di queste misure nel dominio dei tempi e dei loro spettri nel dominio delle frequenze, si possono trarre delle conclusioni sulla fisica del sistema. In particolare, nel Cap. (4) verranno discussi il regime di Accoppiamento del CuGeO₃ in cavità e l'influenza che la condizione di risonanza ha su di esso.

Il set-up costruito per raggiungere questi obiettivi è mostrato in Fig. (3.1) ed è composto principalmente da tre parti:

- 1. impianto per la generazione del campo TeraHertz [6];
- 2. cavità ottica;
- 3. impianto per la misura del campo TeraHertz [6] uscente dalla cavità.

¹Si veda il Cap. (4) per una stima quantitativa di ω_0 , frequenza di risonanza del campione di CuGeO₃.

Di seguito sono presentati i dettagli sui punti 1. e 3., mentre la cavità ottica è meglio caratterizzata nel Cap. (4).



Figura 3.1: Struttura del set-up sperimentale [7].

3.1 Generazione del campo TeraHertz

Nel limite in cui un mezzo può essere considerato lineare, la polarizzazione dovuta a una sollecitazione è sempre a essa proporzionale. Di conseguenza, per generare un campo nella zona del TeraHertz partendo da impulsi ultracorti² è necessario sfruttare effetti ottici di ordine superiore al primo. In particolare, la tecnica utilizzata basa il suo principio di funzionamento sulla *Difference Frequency Generation* (DFG), di cui accenna brevemente di seguito [6]. In questo caso, il mezzo sfruttato per l'ottenimento di questi effetti non lineari è un cristallo di ZnTe (*Zinc Telluride*).

In generale, se si sottopone un mezzo non lineare a una sollecitazione $E(\omega)$, la risposta in polarizzazione può essere espressa come serie di potenze di questa sollecitazione:

$$P(\omega) = \sum_{n=0}^{\infty} P^{(n)}(\omega) = \epsilon_0 \sum_{n=0}^{\infty} c_n E^n(\omega) .$$
(3.1)

con c_n coefficienti generici. Si consideri, ad esempio, il caso in cui la sollecitazione abbia due diverse componenti spettrali:

²Si utilizza un sistema laser *Pharos Light Conversion*, durata degli impulsi ~ 250 fs, repetition rate 1kHz, energia utilizzata per la generazione di ogni impulso ~ $120\mu J/pulse$.

$$E(\omega; t) = E_1(\omega_1) + E_2(\omega_2).$$
(3.2)

È immediato capire che vi sarà un termine di $P^{(2)}(\omega)$ dipendente dal prodotto delle due componenti: concentrandosi su questo termine, si può ottenere

$$P^{(2)}(\omega_1 - \omega_2) \propto E_1(\omega_1) E_2(\omega_2)$$
. (3.3)

S'immagini ora di generalizzare la sollecitazione, ad esempio con un impulso gaussiano

$$E(\omega;t) = E_0 e^{-\frac{(\omega-\omega_0)^2}{a_0}t} :$$
 (3.4)

esso, in analogia con la (3.2), può essere considerato come la somma di un continuo di componenti spettrali. In questo caso la Eqn. (3.3) mantiene il suo significato: in luogo di ω_1 e ω_2 della Eqn. (3.2), la quantità ω può assumere qualunque valore presente nello spettro del campo $E(\omega; t)$. Di conseguenza, anche lo spettro di $P^{(2)}(\omega)$ avrà una forma gaussiana, in cui la frequenza massima sarà determinata dalla larghezza dell'impulso di partenza.

3.2 Misura del campo TeraHertz

Per misurare la forma d'onda di un campo TeraHerz si usa comunemente la cosiddetta tecnica di *electro-optical sampling* [8]. Essa prevede l'utilizzo di campo di prova polarizzato linearmente (detto "impulso ottico") e di un mezzo birifrangente³, la cui birifrangenza possa venir modificata dinamicamente dal campo TeraHertz in dipendenza del suo profilo temporale⁴. Nello specifico, si è fatto uso di tre elementi ottici, che sia l'impulso ottico sia il campo TeraHertz attraversano in successione:

- cristallo di ZnTe, detto "elettro-ottico", con proprietà di birifrangenza;
- ritardatore di fase " $\lambda/4$ ", che introduce un ritardo di fase di $\frac{\pi}{2}$ tra le due componenti ortogonali della polarizzazione della luce;
- prisma di Wollaston, dispositivo in grado di separare in due fasci distinti le due componenti ortogonali della polarizzazione.

Si consideri il caso dell'impulso ottico, campo polarizzato linearmente, che attraversa il sistema. Su di esso il cristallo elettro-ottico non ha alcun effetto,

 $^{^3 \}mathrm{Un}$ mezzo si dice birifrangente se ha indici di rifrazione leggermente diversi lungo direzioni ortognonali.

⁴Questo è detto *effetto Kerr* ottico [6].

dunque le due componenti ortogonali vengono ritardate di $\frac{\pi}{2}$ grazie al $\lambda/4$ e la polarizzazione risultante è circolare. In questo modo le intensità delle due componenti ortogonali, misurate da due detector posti dopo il prisma di Wollaston, saranno uguali.

Si consideri ora il caso di impulso ottico e campo TeraHertz che incidono contemporaneamente sul cristallo elettro-ottico. Esso ne ritarda le componenti di una quantità proporzionale all'intensità del campo TeraHertz:

$$\Delta\phi(t) \propto E_{THz}(t); \qquad (3.5)$$

la polarizzazione in uscita, di conseguenza, sarà leggermente ellittica. Anche dopo aver attraversato il $\lambda/4$ la luce non sarà più polarizzata in modo perfettamente circolare, ma lievemente ellittico. A ciò corrisponde una differenza fra le intensità delle due componenti ortogonali della polarizzazione, dipendente dalla differenza di fase introdotta dal $\lambda/4$:

$$I_x \simeq \frac{I_0}{2} (1 - \Delta \phi)$$

$$I_y \simeq \frac{I_0}{2} (1 + \Delta \phi).$$
(3.6)

Questa differenza verrà misurata dai detector posti dopo il prisma di Wollaston e, infine, si otterrà (si veda anche la Fig. (3.2)):

$$\Delta I = I_x(t) - I_y(t) = I_0 \Delta \phi(t) \propto E_{THz}(t) . \qquad (3.7)$$

In definitiva, variando il ritardo di fase $\Delta \phi(t)$, è possibile misurare il campo TeraHertz in ogni istante.

In chiusura di Sezione, si presentano due grafici relativi al campo TeraHertz "libero", ossia misurato in assenza della cavità: in Fig. (3.3) l'impulso nel dominio dei tempi; in Fig. (3.4) l'impulso nel dominio delle frequenze. Le misure sono state prese in una camera con sovrappressione di azoto, al fine di eliminare le interferenze generate dai modi vibrazionali del vapore acqueo, che assorbono nella stessa regione di frequenze degli oggetti analizzati.



Figura 3.2: Riproduzione schematica dell'apparato di misura del campo TeraHertz [6].



Figura 3.3: Campo TeraHertz libero - dominio dei tempi (misure).



Figura 3.4: Campo TeraHertz libero - dominio delle frequenze (Trasformata di Fourier calcolata).

Capitolo 4

Risultati ottenuti

Con l'analisi delle misure presentate in questo Capitolo, si vuole indagare la natura dell'interazione di un campione di CuGeO₃ con una cavità ottica. In particolare, come si vedrà, la frequenza di risonanza del campione è di circa 1.5 THz, cioè si tratta di un fonone ottico a bassa energia.

Il fenomeno più importante che si desidera osservare è la tendenza del sistema di CuGeO₃ in cavità a raggiungere, per condizioni di risonanza, il regime di Accoppiamento Forte. Al contrario, per condizioni lontane da quella di risonanza, ci si aspetta che il sistema si comporti come uno disaccoppiato.

Per raggiungere questo scopo, si comincia presentando gli spettri di trasmissione delle componenti del sistema separate. In seguito, si mostrano le misure prese con il campione in cavità, ponendo l'attenzione sulle variazioni che si osservano avvicinandosi alla risonanza. Infine, si esegue un confronto con i modelli teorici descritti in precedenza, per discutere l'effettivo raggiungimento del regime di Accoppiamento Forte.

4.1 Regime di separazione

In questa Sezione si presentano le misure relative alle componenti del sistema separate.

4.1.1 Campione

La prima componente del sistema è il campione di CuGeO₃, dello spessore di 20 μm . Per prima cosa, si è misurata la sua risposta a una sollecitazione di campo elettrico nella regione delle frequenze TeraHertz: normalizzando il risultato all'ampiezza della sollecitazione si può ottenere lo spettro di trasmissione. Il confronto fra l'impulso di input e quello di output è presentato in Fig. (4.1) (entrambi i campi sono stati normalizzati al proprio massimo, per consentire un accostamento diretto dell'ampiezza e della posizione delle oscillazioni).

In Fig. (4.2), invece, si mostra lo spettro di trasmissione: da questo grafico si può già osservare che $\omega_0 \simeq 1.5 THz$ (per una stima più precisa si veda la Sez. (4.3.1), al paragrafo *Funzioni Dielettriche*).



Figura 4.1: In arancione: campo TeraHertz libero. In rosso: campo trasmesso dal campione di CuGeO₃ fuori dalla cavità. Entrambe le curve sono normalizzate al proprio massimo per consentire un confronto.

4.1.2 Cavità vuota

La seconda componente del sistema è la cavità ottica vuota. Per consentire il confronto fra le caratteristiche di questa componente in regime disaccoppiato e accoppiato, se n'è misurata la risposta alla sollecitazione TeraHertz per diverse frequenze di risonanza, cioè per diverse lunghezze. In Fig. (4.3) sono riportate le misure di campo elettrico, con i rispettivi spettri di trasmissione calcolati, ottenute per tre diverse lunghezze della cavità.

In tutte e tre le configurazioni, il comportamento nel dominio dei tempi è conforme alle aspettative (cfr. Eqn. (1.6)), cioè si osservano delle oscillazioni modulate da un decadimento esponenziale. Tale decadimento è dovuto alla



Figura 4.2: Spettro di trasmissione del campione di CuGeO₃.

perdita di energia della cavità, quantificata dal suo allargamento spettrale: un basso valore di $\delta\omega_c$ comporta un maggiore "allungamento" temporale del segnale misurato (come nei grafici **a.** e **b.** della figura); viceversa, per alti $\delta\omega_c$, il segnale si smorza velocemente (come nel grafico **c.**).

Il medesimo fenomeno è visibile nel dominio delle frequenze, dove a un piccolo allargamento spettrale corrisponde una minore dispersione dell'energia trasmessa attorno ai massimi (cfr. Eqn. (1.7)). Si noti che nei grafici **d**. ed **e**. compaiono anche i picchi di trasmissione relativi al secondo e al terzo modo della luce sostenuta dalla cavità.



Figura 4.3: Nella colonna di sinistra: campi misurati in uscita da cavità vuote di diversa lunghezza, ovvero frequenza di risonanza (**a**. $\omega_c = 0.45THz$; **b**. $\omega_c = 0.45THz$; **c**. $\omega_c = 0.45THz$). Nella colonna di destra: relativi spettri di Fourier (**d**. $\omega_c = 0.45THz$; **e**. $\omega_c = 0.45THz$; **f**. $\omega_c = 0.45THz$). Per tutte e tre le configurazioni si ha Q = 3.7, che si può considerare indipendente da ω_c .

4.2 Regime di accoppiamento

Si osservino ora gli spettri di trasmissione del campione in cavità, confrontati con quelli del solo campione (Fig. (4.4)) e della cavità vuota per un valore di ω_c vicino alla frequenza di risonanza del campione¹ (Fig. (4.5)). In corrispondenza della risonanza, la curva del campione assume peso spettrale sulla banda sostenuta dalla cavità, risultando in un picco di assorbimento. Questo fenomeno è confermato dalle misure nel dominio dei tempi (presentate in Fig. (4.6)), in cui si osservano dei battimenti poco dopo il massimo assoluto della curva relativa al campione in cavità.



Figura 4.4: In blu: spettro di trasmissione del campione di CuGeO₃ in cavità (misure) in condizioni di risonanza ($\omega_c = 1.46 THz$); distanza fra i due picchi evidenziata. In rosso: spettro di trasmissione del campione di CuGeO₃ fuori dalla cavità (misure), con FWHM evidenziato nel picco di assorbimento ($\omega_0 = 1.47 THz$).

Ora, se il sistema non fosse accoppiato, ci si aspetterebbe una distanza tra i due picchi di trasmissione circa uguale alla larghezza dell'assorbimento del

¹Per sovrapporre lo spettro del sistema accoppiato a quello della cavità vuota, è stato necessario traslare quest'ultima curva. Oltre all'assorbimento, infatti, la presenza del campione ha l'effetto, tipico dei dielettrici, di allungare il cammino ottico della luce tra uno specchio e l'altro. A parità di distanza tra gli specchi, di conseguenza, il picco di trasmissione della cavità vuota ha una posizione completamente diversa rispetto a quello del sistema accoppiato.



Figura 4.5: In blu: spettro di trasmissione del campione di CuGeO₃ in cavità (misure) in condizioni di risonanza ($\omega_c = 1.46 \ THz$); distanza fra i due picchi evidenziata. In verde: spettro di trasmissione della cavità vuota (misure).

solo campione. Tuttavia, come evidenziato in Fig. (4.4), lo Splitting fra i due picchi della prima curva è maggiore della larghezza a metà altezza del picco della prima curva. Ciò suggerisce la presenza di un effetto aggiuntivo dovuto alla risonanza tra cavità e campione, ossia l'esistenza di due nuovi autovalori di energia.

Per verificare questa supposizione, si è analizzato il sistema per diversi valori di ω_c (ovvero lunghezza della cavità), e gli spettri di trasmissione ottenuti per la sola cavità sono riportati in Fig. (4.7), con una rappresentazione tridimensionale²; le misure riguardanti il campione in cavità³, invece, sono presentate in Fig. (4.8). In quest'ultimo caso, è significativo osservare dei "tagli" del grafico, confrontando la condizione di non risonanza (Fig. (4.9)) con alcune configurazioni in prossimità della risonanza (Fig. (4.10)), nelle quali l'assorbimento del campione assume peso spettrale.

Le controparti di questi grafici nel dominio dei tempi sono riportate in

 $^{^{2}}$ Ossia: la trasmissione (colore) è rappresentata in funzione della frequenza di risonanza della cavità (posta in ascissa) e dei valori di frequenza presi in rassegna (posti in ordinata).

³La misura di spettri per maggiori valori di ω_c è stata resa impossibile da ragioni pratiche: è difficoltoso mantenere uniforme la lunghezza della cavità su tutti i suoi assi avvicinando molto gli specchi.



Figura 4.6: In blu: campo elettrico trasmesso dal campione in cavità in condizioni di risonanza ($\omega_c = 1.46 \ THz$). In rosso: campo trasmesso dal campione di CuGeO₃ fuori dalla cavità. Entrambe le curve sono normalizzate al proprio massimo per consentire un confronto.

Fig. (4.11): ancora una volta, ai picchi di assorbimento corrispondono dei battimenti dopo il massimo assoluto della curva.

Complessivamente si può concludere che, in effetti, in condizioni di non risonanza ($\omega_c \neq \omega_0$), gli autovalori di energia tendono a quelli del sistema disaccoppiato. Nella regione iniziale del grafico in Fig. (4.8), infatti, i massimi di trasmissione tendono a posizionarsi sulla retta obliqua $\omega = \omega_c$ (modo sostenuto dalla cavità), mentre una riga di minimi è presente sulla retta orizzontale $\omega = \omega_0$ (assorbimento del campione). In condizioni di risonanza ($\omega_c \simeq \omega_0$), invece, la differenza tra ciascuna curva e gli autovalori disaccoppiati è massima e si può osservare lo Splitting di Rabi.



Figura 4.7: Spettri di trasmissione della cavità vuota per diversi valori di L.



Figura 4.8: Spettri di trasmissione del campione di CuGeO₃ in cavità, per diversi valori di ω_c . La regione di risonanza è quella identificata dalla retta verticale $\omega_c = 1.46 THz$, mentre tratteggiato in rosso è evidenziato la frequenza di risonanza del campione, ossia $\omega = \omega_0 = 1.47 THz$.



Figura 4.9: Spettro di trasmissione del campione in cavità in condizioni di non risonanza (a.), con $\omega_c = 0.81 THz$.



Figura 4.10: Spettro di trasmissione del campione di CuGeO₃ ($\omega_0 = 1.47 THz$) in cavità, per tre diverse configurazioni di Detuning: **a.** $\omega_c = 1.43 THz$; **b.** $\omega_c = 1.46 THz$; **c.** $\omega_c = 1.49 THz$.



Figura 4.11: Misure del campo elettrico trasmesso dal campione in cavità in condizioni di non risonanza (a.), con $\omega_c = 0.81 THz$ e di risonanza (b.), con $\omega_c = 1.46 THz$.

4.3 Verifica del regime di Accoppiamento Forte

In questa Sezione si confrontano le misure con le previsioni di due modelli teorici, e si discute il raggiungimento del regime di Accoppiamento Forte per il sistema risonante costituito dal campione di CuGeO₃ in cavità.

4.3.1 Approccio classico

Una prima conferma del raggiungimento del regime accoppiato può venire dal confronto fra gli spettri di trasmissione misurati sul sistema e quelli simulati con metodo di *Tranfer Matrix*. In particolare, se si tratta il campione di CuGeO₃ in cavità come un sistema a molti strati, l'Eqn. (2.19) consente di ottenere un'espressione analitica per tali spettri, note alcune caratteristiche macroscopiche del sistema come lo spessore e la funzione dielettrica⁴ di ogni strato.

In quest'ottica, il campione in cavità dev'essere visto come un sistema costituito da cinque strati paralleli, che la luce attraversa nell'ordine:

- 1. primo specchio d'oro, dello spessore nominale di circa $10 \ \mu m$;
- 2. primo strato d'aria, di lunghezza variabile⁵;
- 3. campione di CuGeO₃ dello spessore di 20 μm ;
- 4. secondo strato d'aria, di lunghezza uguale al primo;
- 5. secondo specchio d'oro, anch'esso dello spessore nominale di circa 10 μm .

In conclusione, gli spettri possono essere simulati una volta ottenute delle stime per la funzione dielettrica del CuGeO₃ e dell'oro, e per lo spessore efficace degli specchi d'oro.

Funzioni dielettriche Si pone il problema di stimare la funzione dielettrica di un materiale a partire dalle misure del suo spettro di trasmissione. Questo è stato possibile utilizzando l'applicazione RefFit [9], che utilizza il modello di Lorentz per trovare un'espressione analitica di $\epsilon(\omega)$:

$$\tilde{\epsilon}_r(\omega) = 1 + \frac{f\,\omega_p^2}{\omega_0^2 - \omega^2 - i\gamma\omega} \tag{4.1}$$

⁴In realtà, nell'Eqn. (2.19) compaiono gli indici di rifrazione, tuttavia $n(\omega) \simeq \sqrt{\epsilon(\omega)}$, valida anche per quantità complesse.

⁵Variazione nota, finalizzata a modificare la frequenza di risonanza della cavità.

(valida per materiali dielettrici e semiconduttori), dove ω_p , e γ indicano rispettivamente la frequenza di plasma del materiale e un coefficiente di dissipazione, mentre f è legato alla probabilità di assorbimento della radiazione incidente da parte degli oscillatori elettronici.

I valori dei parametri stimati per il CuGeO₃ sono (per un campione spesso $20 \ \mu m$ e luce a incidenza normale):

- $\epsilon_{\infty} = 4.50;$
- $\omega_0 = 1.47 THz;$
- $\omega_p = 0.393 \, THz;$
- $\gamma = 0.0776 THz$.

In Fig. (4.12) si riporta la curva di $\epsilon(\omega)$ calcolata per il CuGeO₃ con il metodo di *Transfer Matrix*, secondo i valori dei parametri riportati sopra. Si osserva un complessivo accordo tra esperimento e simulazione.



Figura 4.12: Spettro di trasmissione del campione di CuGeO₃ fuori dalla cavità: misure e curva simulata con metodo di *Transfer Matrix*.

Per quanto riguarda la funzione dielettrica dell'oro, invece, si è sempre usato il modello di Lorentz⁶, ma si sono utilizzati valori dei parametri già noti [10].

 $^{^6\}mathrm{Si}$ veda l'Appendice (A) per una breve trattazione sui metalli.

Spessore degli specchi Per stimare lo spessore efficace degli specchi, si sono confrontati direttamente gli spettri trasmissione misurati sulla cavità a dimensione nulla (i. e. lontano dalla frequenza di risonanza) con le simulazioni relative a due specchi d'oro posti a contatto. Nelle simulazioni, si è variato il parametro d (spessore efficace degli specchi) cercando il valore che meglio riproduceva lo spettro misurato. Con l'uso di questo criterio, si è concluso che lo spessore efficace degli specchi (che dunque è stato adottato nelle simulazioni successive) è $d \simeq 4.6 nm$, diverso dal valore nominale di 10 nm. In Fig. (4.13) si riportano le due curve (misure e simulazione) per il valore stimato.



Figura 4.13: In verde: spettro di trasmissione di due specchi d'oro spessi 4.6 nm ciascuno (misure). In giallo: spettro di trasmissione di cavità vuota con $\omega_c = 1.46 THz$ (curva simulata con metodo di *Tranfer Matrix*).

Ottenute le simulazioni degli spettri, si discute l'accordo con le misure; i grafici sono riportati in Fig. (4.14) in condizioni prossime alla risonanza.

Da una parte, l'ampiezza dello spettro $T(\omega)$ non è stata riprodotta correttamente dal modello: questo è probabilmente imputabile a una valutazione non precisa dello spessore efficace degli specchi.

Dall'altra parte, però, il dato più significativo è la capacità del modello di prevedere la posizione dei picchi e, in particolare, la distanza tra i due laterali (cioè lo Splitting, che permette di riconoscere il regime di Accoppiamento Forte). A questo proposito, misure e simulazione sono in buon accordo per quanto riguarda il picco centrale e il picco di sinistra. Si osserva, invece, un fallimento nel prevedere la posizione dell'ultimo picco.

Una piena conferma del raggiungimento del regime di Accoppiamento Forte, però, viene dal confronto fra tutte le curve simulate, riportate in Fig. (4.15). In condizioni di risonanza, infatti, il modello riproduce una perfetta simmetria dei due picchi di trasmissione rispetto a ω_c ; risulta evidente, inoltre, che lo Splitting è maggiore della larghezza a metà altezza del picco di assorbimento. Un confronto con le curve misurate è proposto in Fig. (4.16).

4.3.2 Approccio quantistico

Dal punto di vista quantistico, confermare la condizione di Accoppiamento Forte equivale a verificare direttamente la presenza dello Splitting di Rabi. In Fig. (4.17) si possono osservare gli autovalori $\operatorname{Re}(\tilde{\omega}_{UP})$ e $\operatorname{Re}(\tilde{\omega}_{LP})$ calcolati sulla base della Eqn. (2.22), in funzione del fattore di merito della cavità⁷ in condizioni di risonanza. In base alla Eqn. (2.26), la condizione di Accoppiamento Forte risulta evidente, per via della distanza tra le due curve al punto Q = 3.7 (fattore di merito della cavità utilizzata).

Si osservi che, per raggiungere l'Accoppiamento Forte, non è necessario avere un alto fattore di merito; in particolare, dopo un certo valore di Q lo Splitting fra i due autovalori rimane pressappoco costante.

Un ulteriore controllo può venire dalla Fig. (4.18), in cui sono graficate $\operatorname{Im}(\tilde{\omega}_{UP})$ e $\operatorname{Im}(\tilde{\omega}_{LP})$ calcolate sulla base della Eqn. (2.22), in funzione del fattore di merito della cavità, in condizioni di risonanza. Confrontando queste curve con le Fig. (4.4) e (4.5), si nota che le previsioni sono rispettate: la larghezza a metà altezza dello spettro del sistema accoppiato è minore rispetto alla cavità vuota, ma maggiore rispetto al campione fuori dalla cavità.

⁷Poiché $Q \propto \frac{1}{\delta\omega_c}$ (cfr. Eqn. (1.9)), variare Q equivale a considerare la dispersione della cavità.



Figura 4.14: Spettro di trasmissione del campione di CuGeO₃ ($\omega_0 = 1.47 THz$) in cavità. Misure e curva simulata con metodo di *Transfer Matrix* per tre diverse configurazioni di Detuning: **a.** $\omega_c = 1.43 THz$; **b.** $\omega_c = 1.46 THz$; **c.** $\omega_c = 1.49 THz$.



Figura 4.15: In blu: spettro di trasmissione del campione di CuGeO₃ in cavità (simulazione) in condizioni di risonanza ($\omega_c = 1.46 THz$); distanza fra i due picchi evidenziata. In rosso: spettro di trasmissione del campione di CuGeO₃ fuori dalla cavità (simulazione), con FWHM evidenziato nel picco di assorbimento ($\omega_0 = 1.47THz$). Tratteggiato in verde: spettro di trasmissione della cavità vuota (simulazione).



Figura 4.16: In blu: spettro di trasmissione del campione di CuGeO₃ in cavità (misure) in condizioni di risonanza ($\omega_c = 1.46 THz$). In rosso: spettro di trasmissione del campione di CuGeO₃ fuori dalla cavità (misure) ($\omega_0 = 1.47 THz$). Tratteggiato in verde: spettro di trasmissione della cavità vuota (misure). Le curve sono state normalizzate per facilitare un confronto.



Figura 4.17: Parte reale degli autovalori di energia (in unità di \hbar) calcolati in funzione del fattore di merito. I parametri sperimentali inseriti sono: $\sqrt{Ng} = 0.25 THz$, $\delta\omega_0 = 0.33 THz$, $\omega_0 = 1.47 THz$; idealmente si è considerato $\omega_c = \omega_0$. La linea verticale tratteggiata rappresenta la cavità utilizzata nell'esperimento, con Q = 3.7.



Figura 4.18: Parte immaginaria degli autovalori di energia (in unità di \hbar) calcolati in funzione del fattore di merito. I parametri sperimentali inseriti sono: $\sqrt{Ng} = 0.25 THz$, $\delta\omega_0 = 0.33 THz$, $\omega_0 = 1.47 THz$; idealmente si è considerato $\omega_c = \omega_0$. La linea verticale tratteggiata rappresenta la cavità utilizzata nell'esperimento, con Q = 3.7.

Conclusioni

Il lavoro svolto è consistito nello studio di un sistema in regime di Accoppiamento Forte, cioè un campione $CuGeO_3$ in cavità ottica con esso risonante.

Nell'analisi preliminare, le misure riguardanti le componenti del sistema disaccoppiato hanno dato un buon riscontro rispetto alla teoria.

In primo luogo, è stato possibile stimare la funzione dielettrica (e, in particolare, la frequenza di risonanza) del campione di Germanato di Rame e ottenere, grazie ai parametri stimati, simulazioni dello spettro di trasmissione in accordo con le misure.

In secondo luogo, variando i parametri della cavità vuota si sono osservati gli effetti previsti, cioè il cambiamento delle frequenze dei modi sostenuti e il loro diverso tempo di vita medio.

Per quanto riguarda, invece, il sistema accoppiato, si può concludere che il cambiamento osservato negli spettri di trasmissione sia effettivamente dovuto all'Accoppiamento Forte, che si manifesta in condizioni di risonanza fra il materiale e la cavità.

In particolare, questa ipotesi è stata confermata entro limiti ragionevoli dal confronto con il modello classico. Da una parte, la riproduzione degli spettri di trasmissione è riuscita solo parzialmente: una stima probabilmente imprecisa dello spessore degli specchi d'oro della cavità ha impedito di calcolare accuratamente l'intensità della luce trasmessa.

Dall'altra parte, però, le simulazioni dei medesimi spettri alla risonanza hanno consentito di identificare il regime di Accoppiamento Forte, tramite una valutazione complessivamente corretta dello splitting fra i picchi di trasmissione.

Il confronto fra le misure e le previsioni teoriche del modello quantistico, invece, è risultato in un pieno accordo. Esso, infatti, ha evidenziato chiaramente la generazione degli autovalori del sistema accoppiato (osservabili sotto forma di due massimi di trasmissione distinti), così come lo Splitting di Rabi fra di essi e il loro allargamento spettrale. Questo risultato, unitamente alla verifica di averlo raggiunto per via della risonanza con la cavità ottica, indica che il sistema si trovava in regime di Accoppiamento Forte.

Si è provato, inoltre, che ciò non dipendeva, nei limiti previsti, dal fattore di merito della cavità. Questo è stato possibile sempre grazie al confronto del valore sperimentale di Q con le curve calcolate secondo la teoria, che indicavano valori di Splitting simili a quelli misurati.

Appendice A Il modello di Lorentz

In questa Appendice si illustrano le ipotesi che conducono, nell'ambito del modello di Lorentz [11], a trovare un'espressione per $\epsilon(\omega)$ di un materiale. L'uso del formalismo complesso consente di estendere il concetto di funzione dielettrica a mezzi generici, nei quali, in aggiunta alle cariche legate caratteristiche dei dielettrici, siano presenti anche elettroni liberi.

Si consideri un materiale dielettrico su cui incide un'onda elettromagnetica. Gli elettroni legati possono essere schematizzati come masse che oscillano su un'unica direzione intorno ai nuclei atomici, sotto l'azione delle seguenti forze:

- $F_{ric} = -m\omega_0^2 x$, che descrive il richiamo esercitato dal nucleo sull'elettrone, quando questo si sposta dalla posizione di equilibrio¹;
- $F_{diss} = -m\gamma \dot{x}$, che rappresenta la dissipazione, dovuta ad esempio al moto accelerato dell'elettrone;
- $F_{forz} = qE_0 \cos(\omega t)$, ossia il termine forzante dato dalla radiazione incidente.

I simboli $m, \gamma \in q$ indicano rispettivamente la massa dell'elettrone, il coefficiente di dissipazione e la carica dell'elettrone. Sommando le forze agenti e applicando la seconda Legge di Newton si ottiene:

$$m\ddot{x}(t) + m\gamma\dot{x}(t) + m\omega_0^2 x(t) = qE_0\cos(\omega t), \qquad (A.1)$$

del tutto analoga all'equazione di un oscillatore forzato smorzato. Essa può essere risolta sostituendo funzioni di prova complesse del tipo $\tilde{x}(t) = \tilde{x}_0 e^{-i\omega t}$, e conduce alla seguente espressione per la funzione dielettrica:

¹Qualunque moto intorno a un punto di equilibrio stabile può essere approssimato, per spostamenti sufficientemente piccoli, con un oscillatore armonico unidimensionale. In questo caso, $k_{el} \leftrightarrow m\omega_0^2$.

$$\tilde{\epsilon}_r^{diel}(\omega) = \frac{\tilde{\epsilon}(\omega)}{\epsilon_0} = 1 + \frac{f\,\omega_p^2}{\omega_0^2 - \omega^2 - i\gamma\omega}\,;\tag{A.2}$$

 ω_p indica la frequenza di plasma del materiale, mentre f è legato alla probabilità di assorbimento della radiazione incidente da parte dell'oscillatore.

Se si considera un materiale conduttore al posto di un dielettrico, si può sempre impostare un'equazione del tutto analoga alla Eqn. (A.1), in assenza del termine F_{osc} . Questo consente di trovare il contributo delle cariche libere, mentre, in un secondo momento, si aggiunge alla soluzione anche il termine delle cariche legate, presente nella Eqn. (A.2). Il risultato finale per la funzione dielettrica di un materiale generico, in cui sono presenti sia cariche libere sia cariche legate, è:

$$\tilde{\epsilon}_r^{gen}(\omega) = 1 + \frac{F \,\Omega_p^2}{\omega^2 - i\Gamma\omega} + \frac{f \,\omega_p^2}{\omega_0^2 - \omega^2 - i\gamma\omega}\,,\tag{A.3}$$

dove F, $\Omega_p \in \Gamma$ sono termini analoghi, rispettivamente, a f, $\omega_p \in \gamma$, ma riferiti alle cariche libere. Per semplicità, $\tilde{\epsilon}_r(\omega)$ viene generalmente indicata con $\epsilon(\omega)$.

Si osservi che è possibile una generalizzazione del modello al caso in cui siano presenti, nel materiale, famiglie di elettroni con diversi valori dei parametri f, $\omega_p \in \gamma$. Questo tipo di trattazione, però, non è al momento necessaria, poiché le Eqn. (A.2) e (A.3) sono quelle a cui si fa riferimento nel presente lavoro di tesi per il calcolo di $\epsilon(\omega)$ dei materiali considerati.

Bibliografia

- Purcell, E. M. in *Confined Electrons and Photons* 839–839 (Springer, 1995).
- 2. Le Bellac, M. *Physique quantique (nouvelle édition)* (EDP sciences, 2012).
- Kavokin, A. V., Baumberg, J. J., Malpuech, G. & Laussy, F. P. *Micro-cavities* (Oxford university press, 2017).
- Kockum, A. F., Miranowicz, A., De Liberato, S., Savasta, S. & Nori, F. Ultrastrong coupling between light and matter. *Nature Reviews Physics* 1, 19–40 (2019).
- 5. DelPo, C. A. *et al.* Polariton transitions in femtosecond transient absorption studies of ultrastrong light-molecule coupling. *The journal of physical chemistry letters* **11**, 2667–2674 (2020).
- 6. Giannetti, D. C., Banfi, D. F., Ferrini, D. G. & Rampi, E. Generation and Detection of Terahertz pulses for time-domain spectroscopy.
- 7. Fausti, D., Jarc, D. G. & Mastropasqua, A. Proprietà ottiche di materiali in cavità in regime di accoppiamento forte luce-materia.
- 8. Novelli, F. In search of selective excitations for studying out-of-equilibrium properties in strongly correlated electron systems and high temperature superconductors (2013).
- 9. Kuzmenko, A. RefFIT 2016.
- Rakić, A. D., Djurišić, A. B., Elazar, J. M. & Majewski, M. L. Optical properties of metallic films for vertical-cavity optoelectronic devices. *Applied optics* 37, 5271–5283 (1998).
- 11. Griffiths, D. J. Introduction to electrodynamics 2005.
- F. Ribeiro, R. et al. Theory for nonlinear spectroscopy of vibrational polaritons. The journal of physical chemistry letters 9, 3766–3771 (2018).

- Kaluzny, Y., Goy, P., Gross, M., Raimond, J. & Haroche, S. Observation of self-induced Rabi oscillations in two-level atoms excited inside a resonant cavity: The ringing regime of superradiance. *Physical review letters* 51, 1175 (1983).
- Meschede, D., Walther, H. & Müller, G. One-atom maser. *Physical review letters* 54, 551 (1985).
- Thompson, R., Rempe, G. & Kimble, H. Observation of normal-mode splitting for an atom in an optical cavity. *Physical review letters* 68, 1132 (1992).
- Weisbuch, C., Nishioka, M., Ishikawa, A. & Arakawa, Y. Observation of the coupled exciton-photon mode splitting in a semiconductor quantum microcavity. *Physical Review Letters* 69, 3314 (1992).