



UNIVERSITÀ  
DEGLI STUDI  
DI TRIESTE

---

Dipartimento di Fisica  
CORSO DI LAUREA IN FISICA  
TESI DI LAUREA

Studio del superconduttore ad alta  
temperatura Bi-2212 in cavità ottica  
con simulazioni di Transfer Matrix

*Laureanda:*  
Fabiana Fragnelli

*Relatore:*  
Prof. Daniele Fausti

*Correlatori:*  
Dott.ssa Angela Montanaro  
Dott. Giacomo Jarc

ANNO ACCADEMICO 2022-2023



# Sommario

La possibilità di sfruttare una cavità ottica, una regione di spazio in cui viene confinata luce ad una certa frequenza, per ridisegnare l'ambiente elettromagnetico, è emersa negli ultimi anni come un nuovo strumento di controllo delle proprietà dei materiali [1].

La scoperta che una cavità ottica possa aumentare o addirittura sopprimere l'entità dell'interazione tra un materiale e la luce risale al 1946, quando Purcell osservò l'aumento della velocità di emissione spontanea degli atomi quando questi sono incorporati in una cavità risonante [2]. Da questa osservazione è nata una teoria, oggi nota come elettrodinamica quantistica di cavità (cavity QED), con l'obiettivo di sfruttare cavità risonanti per modulare l'accoppiamento tra luce e materia.

Sin dalla sua nascita, sono state tante le dimostrazioni che riguardano la possibilità di cambiare le proprietà chimico-fisiche di un campione in cavità attraverso il controllo dell'interazione tra il materiale e il campo elettromagnetico che lo circonda. Si è scoperto, ad esempio, che è possibile influenzare la reaction rate di reazioni chimiche, la conducibilità di materiali 2D, la ferroelettricità, la struttura molecolare e il trasferimento di carica ed energia [3]. È recente inoltre la scoperta, alla quale proprio il gruppo di ricerca di Elettra Sincrotrone ha contribuito, di poter trasformare un sistema da metallo a isolante regolando la distanza tra gli specchi della cavità e il loro allineamento rispetto al campione [4].

Con una strategia simile, questo lavoro di tesi esplora la possibilità di controllare le proprietà macroscopiche della materia attraverso l'impiego di cavità ottiche anche nel caso di materiali superconduttori. L'interazione di questa classe di materiali con la radiazione elettromagnetica potrebbe portare in tal caso a influenzare, e addirittura stimolare, il loro comportamento superconduttivo.

La scelta del campione superconduttore da introdurre in cavità è ricaduta sui cuprati, in quanto sono materiali caratterizzati da un diagramma di fase estremamente ricco. A seconda della perturbazione esterna apportata al materiale, infatti, questo può transire in una regione completamente diversa del suo diagramma di fase acquisendo, di conseguenza, uno stato macroscopico diverso. In altre parole, si tratta di materiali che si è dimostrato sperimentalmente essere estremamente sensibili alle variazioni delle condizioni ambientali in cui si trovano. Anche una

minima alterazione nei parametri come pressione, temperatura, doping o, ancora, un'interazione con un impulso luminoso risonante con specifici modi vibrazionali, può indurre nei cuprati un comportamento superconduttivo anche in regioni del diagramma di fase in cui il materiale non superconduce all'equilibrio [5].

Questa tesi si concentra sull'analisi del comportamento superconduttivo del cuprato  $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ , comunemente noto come Bi-2212, all'interno di una cavità ottica. In particolare, mira a studiare la transizione del materiale allo stato superconduttivo quando è posto in una cavità risonante nella regione del THz, esaminando l'interazione dei modi di bassa energia del campione con il campo di cavità. Questo studio sarà condotto attraverso simulazioni di Transfer Matrix, dalle quali si otterranno gli spettri di trasmissione in cavità del materiale al di sotto e al di sopra della temperatura critica. L'obiettivo finale di questo lavoro è individuare un'osservabile che permetta di tracciare otticamente la temperatura critica del superconduttore quando questo è inserito in una cavità THz.

Nel capitolo 1 viene presentato il modello di cavità implementato nelle simulazioni svolte in questa tesi: l'interferometro di Fabry-Pérot. Vengono quindi delineati i due regimi di accoppiamento luce-materia che la cavità permette di realizzare: il regime di accoppiamento debole (*weak coupling*) e quello forte (*strong coupling*).

Nel capitolo 2 viene introdotto il metodo del Transfer Matrix, che consente di modellare lo spettro di trasmissione del materiale in cavità come lo spettro di un sistema costituito da più strati, in dipendenza da parametri sperimentali noti. In particolare, viene applicato ad un caso semplice di simulazione, quello di oscillatore singolo accoppiato in cavità, al fine di dimostrare che i risultati ottenuti con questo metodo sono in accordo con quelli derivati dalla teoria esposta nel capitolo 1.

I successivi capitoli 3 e 4 sono dedicati allo studio del reale campione superconduttore. Nel capitolo 3 viene introdotta la famiglia dei cuprati e il diagramma di fase comune a questa classe di materiali, alla quale il Bi-2212 appartiene. Di questo composto ne vengono descritte la struttura cristallina e le proprietà ottiche all'equilibrio nella regione del THz. Conoscere le funzioni ottiche è infatti fondamentale affinché il Bi-2212 possa essere preso come campione in simulazioni di Transfer Matrix, mirate a studiarne il comportamento superconduttivo in cavità. I risultati delle simulazioni svolte vengono riportati e discussi nel capitolo 4.

Nel capitolo 5, infine, viene riportato un esperimento pump-probe condotto in laboratorio al fine di indagare se il campione manifesti proprietà superconduttive non solo a temperature inferiori a quella critica, ma anche in risposta a una variazione dell'ambiente elettromagnetico della cavità, a cui esso è accoppiato.

# Indice

<b>1</b>	<b>Accoppiamento luce-materia in cavità ottiche</b>	<b>7</b>
1.1	Interferometro di Fabry-Pérot . . . . .	7
1.2	Fattore di qualità Q . . . . .	9
1.3	Regimi di accoppiamento . . . . .	11
1.3.1	Accoppiamento debole . . . . .	11
1.3.2	Accoppiamento forte . . . . .	13
<b>2</b>	<b>Transfer Matrix</b>	<b>17</b>
2.1	Propagazione della luce in strutture multistrato . . . . .	17
2.2	Transfer Matrix per lo studio di un oscillatore singolo posto in cavità	21
2.2.1	Cavità vuota . . . . .	21
2.2.2	Materiale . . . . .	22
2.2.3	Oscillatore singolo in cavità . . . . .	24
<b>3</b>	<b>Cuprati superconduttori</b>	<b>28</b>
3.1	Diagramma di fase dei cuprati . . . . .	28
3.2	Bi-2212 . . . . .	32
3.2.1	La struttura cristallina . . . . .	32
3.2.2	Funzione dielettrica di bassa energia . . . . .	33
<b>4</b>	<b>Simulazioni di Transfer Matrix del Bi-2212 in cavità Terahertz</b>	<b>35</b>
4.1	Trasmissione THz del Bi-2212 . . . . .	35
<b>5</b>	<b>Misure ottiche della transizione superconduttiva in cavità</b>	<b>43</b>
5.1	La scelta della tecnica di pump-probe . . . . .	43
5.2	Set-up sperimentale . . . . .	44
5.2.1	Cavità criogenica . . . . .	46
5.3	Misure preliminari pump-probe fuori dalla cavità . . . . .	47
5.4	Risultati ottenuti . . . . .	48
	<b>Conclusioni</b>	<b>51</b>



# Capitolo 1

## Accoppiamento luce-materia in cavità ottiche

In questo capitolo vengono descritte le proprietà ottiche di un interferometro di Fabry-Pérot, il quale, oltre a costituire il modello concettualmente più semplice di cavità ottica, è anche quello implementato nelle simulazioni svolte in questa tesi. Successivamente, studieremo i sistemi accoppiati luce-materia che trovano realizzazione all'interno delle cavità, distinguendo due regimi di accoppiamento: il regime di *weak coupling* e quello di *strong coupling*.

### 1.1 Interferometro di Fabry-Pérot

L'interferometro di Fabry-Pérot è il caso più basilare di cavità ottica, essendo costituito da due specchi semiriflettenti posti parallelamente tra loro ad una certa distanza  $L$ . Della luce con lunghezza d'onda  $\lambda$  viene immessa nel risonatore facendola incidere su un lato della cavità: ogni volta che la luce raggiunge l'altra estremità, viene parzialmente trasmessa all'esterno e in parte trattenuta all'interno dell'interferometro.

Date le condizioni al contorno stabilite dagli specchi, la luce che rimane confinata all'interno della cavità subisce riflessioni multiple: ad ogni riflessione acquista una fase  $\phi_C$ , proporzionale alla distanza  $L$  tra gli specchi e all'indice di rifrazione  $n$  interno alla cavità. Sommata alla fase  $\phi_M$  dovuta agli specchi, la fase accumulata complessivamente in un cammino  $2L$  risulta essere:

$$\phi = 2\phi_M + 2\phi_C = 2\phi_M + 2\frac{2\pi nL}{\lambda} \quad (1.1)$$

Si noti che abbiamo supposto ideali gli specchi della cavità, per i quali  $\phi_M = \pi$ . Questa è l'approssimazione tipicamente fatta nel caso di specchi metallici, che è il

caso studiato in questa tesi.

Quando lo sfasamento  $\phi$  è un multiplo intero di  $2\pi$  l'interferenza è costruttiva, cioè la lunghezza  $L$  della cavità ottica è un multiplo intero di metà della lunghezza d'onda:

$$L = m \frac{\lambda}{2n} \quad m \in \mathbb{N} \quad (1.2)$$

È possibile quindi regolare la distanza  $L$  tra gli specchi della cavità affinché sostenga solo i particolari modi<sup>1</sup> che soddisfano l'equazione 1.2.

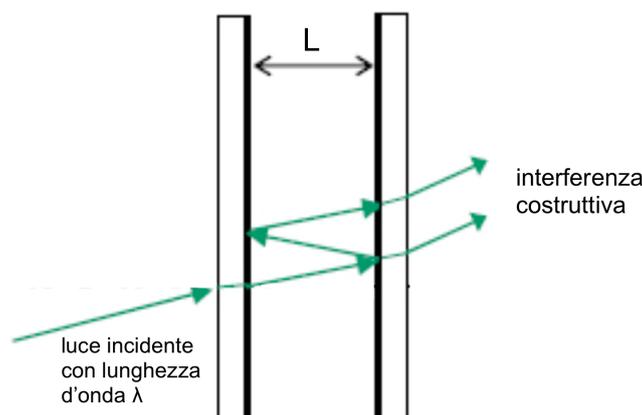


Figura 1.1: **Schematizzazione di un interferometro di Fabry-Pérot.** La luce con lunghezza d'onda  $\lambda$  entra nella cavità delimitata da due specchi paralleli e distanti  $L$  tra loro. L'interferometro trasmette una parte della luce e riflette l'altra: si ha interferenza costruttiva quando la fase accumulata nelle riflessioni è un multiplo intero di  $2\pi$ .

Dopo aver sommato tutti i contributi di radiazione trasmessi dalla cavià e considerato gli effetti di interferenza, possiamo calcolare la trasmissione totale della cavità in funzione della fase  $\phi$  e della riflettività degli specchi  $R_m$  [6]:

$$T(\phi) = \frac{1}{1 + 4 \frac{R_m}{(1-R_m)^2} \sin^2\left(\frac{\phi}{2}\right)} \quad (1.3)$$

La trasmissione è massima in corrispondenza delle frequenze  $\omega_m = \frac{2\pi cn}{\lambda_m}$  che sono quelle dei modi permessi dalle condizioni al contorno. Queste frequenze  $\omega_m$  si ottengono quando la fase totale è  $\phi = 2\pi m$ , come mostrato in figura 1.2.

---

<sup>1</sup>Un modo di una cavità ottica risonante è una configurazione stazionaria del campo EM che soddisfa l'equazione delle onde di Maxwell con le condizioni al contorno imposte dalla presenza degli specchi del risonatore.

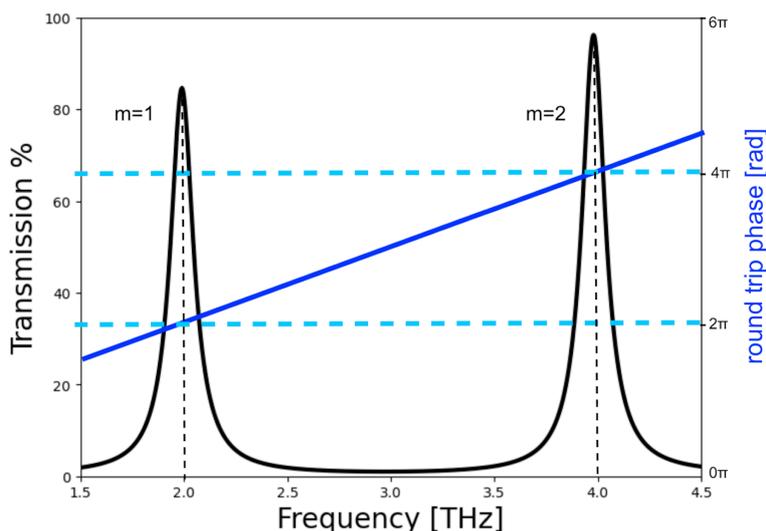


Figura 1.2: **Trasmissione di un interferometro di Fabry-Pérot.** Una frequenza risonante  $\omega_m$  (linea verticale tratteggiata) compare ogni volta che la fase accumulata (linea blu) corrisponde a un multiplo intero di  $2\pi$  (linee tratteggiate orizzontali).

## 1.2 Fattore di qualità Q

Poichè gli specchi non sono totalmente riflettenti, l'intensità della radiazione confinata nella cavità diminuisce nel tempo. Tale perdita di energia è quantificata da un fattore adimensionale, detto fattore di qualità Q, definito come il rapporto tra l'intensità della radiazione  $I(t)$  presente all'interno della cavità al tempo  $t$  e l'energia dissipata per ciclo ottico:

$$Q = \omega_c \frac{I(t)}{-\frac{dI(t)}{dt}} \quad (1.4)$$

in cui  $\omega_c$  è la frequenza del modo della cavità.

Risolvendo l'equazione differenziale con intensità all'istante iniziale  $I_0$ , si trova:

$$I(t) = I_0 e^{-\frac{\omega_c}{Q}t} \quad (1.5)$$

Data la proporzionalità tra l'energia elettromagnetica  $I(t)$  e il quadrato dell'ampiezza del campo elettrico  $|E(t)|^2$ , il campo elettrico all'interno del risonatore è:

$$E(t) = E_0 e^{-\frac{\omega_c}{2Q}t} e^{-i\omega_c t} \quad (1.6)$$

con  $E_0$  ampiezza iniziale del campo corrispondente a  $I_0$ .

La trasformata di Fourier dell'equazione (1.6) mostra che la distribuzione spettrale

dell'intensità e del campo nella cavità è una lorentziana:

$$I(\omega) \propto |E(\omega)|^2 \propto \frac{1}{(\omega - \omega_c)^2 + (\frac{\omega_c}{2Q})^2} \quad (1.7)$$

Definendo nell'equazione (1.5) il tempo di vita medio del fotone nella cavità come:

$$\tau = \frac{Q}{\omega_c} \quad (1.8)$$

è evidente come il fattore Q determini il tempo di vita medio di un fotone all'interno della cavità. Inoltre  $\tau$  è inversamente proporzionale alla larghezza a mezza altezza (FWHM)  $\delta\omega_c$  della curva lorentziana:

$$\tau = \frac{1}{\delta\omega_c} \quad (1.9)$$

Pertanto, combinando le equazioni (1.8) e (1.9) otteniamo:

$$Q = \frac{\omega_c}{\delta\omega_c} \quad (1.10)$$

Questa relazione di inversa proporzionalità tra Q e  $\delta\omega_c$  mostra che una cavità con fattore di qualità più alto ha una larghezza di banda minore.

Si può inoltre dimostrare<sup>2</sup> che il fattore di qualità può essere espresso in funzione della riflettività degli specchi  $R_m$  come:

$$Q = \frac{m\pi}{2} \frac{1 + R_m}{1 - R_m} \quad (1.11)$$

Mettendo insieme le equazioni 1.10 e 1.11 si ricava:

$$\delta\omega_c = \frac{2\omega_c}{m\pi} \frac{1 - R_m}{1 + R_m} \quad (1.12)$$

che lega direttamente la riflettività  $R_m$  alla larghezza di banda  $\delta\omega_c$  del modo di cavità e quindi al fattore di qualità Q. Un valore maggiore di  $R_m$  implica un fattore Q più alto e una curva di trasmissione della cavità più stretta: questo andamento è confermato dalla figura 1.3.

---

<sup>2</sup>Dalla definizione 1.4 del fattore Q, in cui l'energia persa per ciclo ottico  $\Delta I_{cycle}$  in funzione di quella dissipata nel tempo impiegato dalla luce per percorrere la lunghezza della cavità  $\Delta I_{trip}$  è:  $\Delta I_{cycle} = \Delta I_{trip} \frac{\Delta t_{cycle}}{\Delta t_{trip}}$ . Ad ogni trip percorso dalla luce, la probabilità che i fotoni fuoriescano dalla cavità è  $1 - R_m$  il che implica  $\Delta I_{trip} = (1 - R_m)I$  in un tempo  $\Delta t_{trip} = mn\lambda/2c$ .

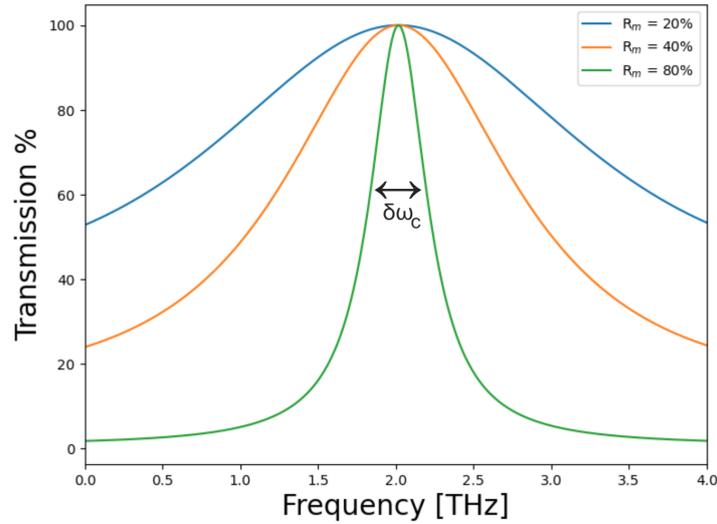


Figura 1.3: **Trasmissione della cavità in funzione della riflettività  $R_m$  degli specchi.** Aumentando la riflettività degli specchi e quindi il fattore di qualità  $Q$ , si ottengono curve di trasmissione con larghezza di banda  $\delta\omega_c$  decrescente.

## 1.3 Regimi di accoppiamento

L'importanza di trattare cavità ottiche risiede nel fatto che esse consentano l'accoppiamento tra luce e materia quando un campione viene posizionato tra i due specchi. Infatti, i fotoni che restano confinati all'interno perchè riflessi dagli specchi, interagiscono con la materia dando origine a sistemi accoppiati. Distingueremo due regimi di accoppiamento luce-materia per materiali in cavità: quello di *weak coupling* (accoppiamento debole) e di *strong coupling* (accoppiamento forte).

### 1.3.1 Accoppiamento debole

Quando un emettitore quantistico (come ad esempio un atomo in uno stato eccitato) è nel vuoto, ha una probabilità molto bassa di riassorbire i fotoni che esso stesso emette. Questa probabilità aumenta quando il materiale è posto in una cavità, in quanto in questa configurazione i fotoni emessi vengono riflessi dagli specchi e restano intrappolati all'interno del risonatore.

In regime di accoppiamento debole, tuttavia, la probabilità di riassorbimento è minore della probabilità che i fotoni escano dalla cavità. Pertanto il weak coupling si manifesta quando, rispetto all'interazione nel vuoto, non cambiano nè gli stati nè le energie del materiale in risonanza con un modo della cavità, ma solo il tempo di emissione dei fotoni da parte dell'atomo stesso.

Se la frequenza naturale di emissione del sistema  $\omega_0$  coincide con la frequenza di

risonanza della cavità ottica  $\omega_c$ , la velocità con cui il materiale emette fotoni può essere aumentata, pertanto il loro tempo di vita è più breve in cavità che nel vuoto. Questo fenomeno di controllo dell'emissione spontanea di uno stato eccitato in cavità è noto come effetto Purcell [2], ed è una conseguenza del cambio di densità di stati fotonici vista dal materiale in condizione di risonanza.

Adottando un approccio perturbativo per calcolare la probabilità di emissione e sfruttando la regola d'oro di Fermi, si giunge alla relazione [7]:

$$\frac{\tau_0}{\tau_c} \propto F_P \frac{\Delta\omega_c^2}{(\omega_c - \omega_0)^2 + \Delta\omega_c^2} \quad (1.13)$$

in cui  $\tau_0$  e  $\tau_c$  indicano rispettivamente i tempi di vita medi di uno stato eccitato nel vuoto e in cavità,  $\omega_0$  e  $\omega_c$  la frequenza di risonanza dell'emettitore e della cavità, e  $\Delta\omega_c$  la larghezza di banda del modo della cavità.

L'equazione (1.13) mostra che l'entità dell'incremento del rate di emissione spontanea è controllata dal fattore di Purcell  $F_P$ , definito come [7]:

$$F_P = \frac{3}{4\pi^2} \frac{\lambda_c^2 Q}{n^3 V} \quad (1.14)$$

dove  $n$  è l'indice di rifrazione all'interno della cavità,  $V$  è il volume del risonatore e  $Q$  è il fattore di qualità introdotto nella sezione 1.2, che quantifica il confinamento della luce nel risonatore.

La dipendenza del fattore di Purcell dal rapporto  $Q/V$  è intuitiva: maggiore è il tempo che la luce trascorre nella cavità (alto  $Q$ ), e più confinata è la luce (piccolo  $V$ ), maggiore è il controllo del risonatore sulla velocità di emissione spontanea dell'atomo (alto  $F_P$ ).

Si noti dall'equazione (1.13) che è possibile diminuire la quantità  $\tau_c$  non solo aumentando il fattore di merito della cavità, ma anche quando si è prossimi alla condizione di risonanza (ovvero quando  $\omega_c \approx \omega_0$ ), come mostrato in figura 1.4.a). La figura (1.4.b) mostra un esempio del controllo della dinamica di emissione spontanea di singoli quantum dots (QDs) di InGaAs nel caso in cui esso si trovi in risonanza con la cavità (QD1), fuori risonanza (QD2), e nel vuoto [8]. I risultati confermano che, rispetto al caso senza alcuna cavità, l'emissione di fotoni è più veloce in presenza di una cavità risonante e più lenta in presenza di una cavità non risonante.

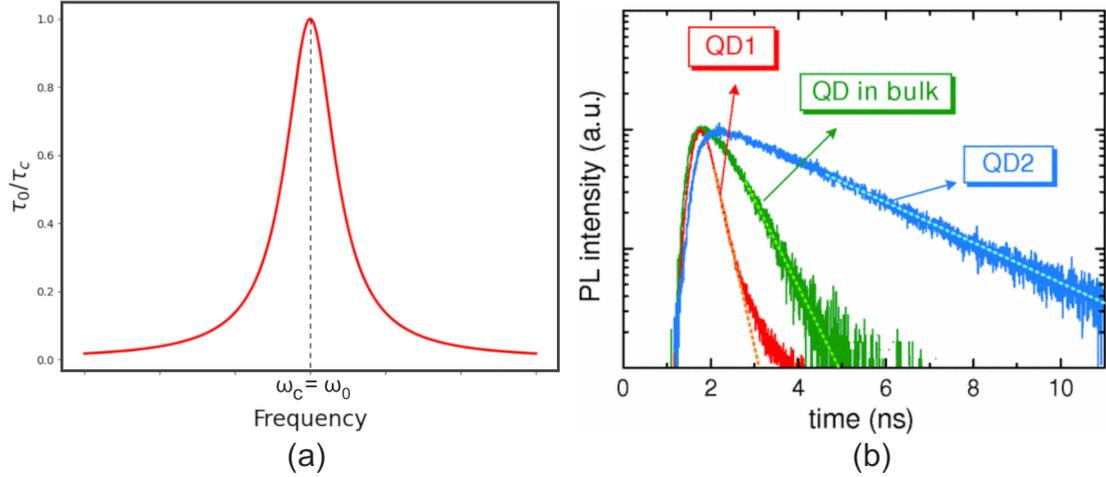


Figura 1.4: **Effetto Purcell.** (a) **Andamento dell'emissione spontanea di uno stato eccitato del materiale in funzione di  $\omega_c$ .** Il picco è raggiunto quando il materiale è risonante con la cavità ( $\omega_c = \omega_0$ ). (b) **Controllo dei tempi di decadimento in regime di weak coupling [8].** È mostrato l'andamento in scale arbitrarie dell'intensità della fotoluminescenza dei quantum dots di InGaAs in 3 casi: in risonanza con la cavità (QD1), fuori risonanza (QD2) e nel vuoto (QD in bulk).

### 1.3.2 Accoppiamento forte

Nel regime di strong coupling, la probabilità che i fotoni emessi dal materiale in cavità e riflessi dagli specchi vengano riassorbiti dal materiale stesso è maggiore della probabilità che escano dalla cavità. In questo regime di accoppiamento, gli stati e i valori di energia del sistema accoppiato sono diversi da quelli che il sistema avrebbe nel vuoto.

Al fine di ricavare l'espressione analitica per gli autostati e gli autovalori di un sistema in regime di accoppiamento forte, adottiamo una descrizione quantistica in cui sia il campo della cavità che quello del materiale sono quantizzati. In questa descrizione, idealizzeremo il materiale come costituito da un insieme di  $N$  sistemi a due livelli energetici che interagiscono con il campo quantistico di cavità. Questo perchè siamo in un regime lineare, in cui la cavità, in assenza del materiale, è sempre nel suo ground state. La dimensione dello spazio di Hilbert in cui si opera è pertanto  $N + 1$ .

L'Hamiltoniana che descrive questa interazione è l'Hamiltoniana del modello di Dicke [9]:

$$\hat{H}_D = \hat{H}_0 + \hat{H}_C + \hat{H}_{INT} \quad (1.15)$$

in cui  $\hat{H}_0$  è l'hamiltoniana di cavità associata al sistema a due livelli,  $\hat{H}_C$  quella associata al campo elettromagnetico e  $\hat{H}_{INT}$  quella che descrive l'accoppiamento

tra il sistema a due livelli e il campo.

Dapprima consideriamo il caso in cui ad interagire sia un solo dipolo ( $N = 1$ ) del materiale, per cui il potenziale di interazione è:

$$U = -\vec{d} \cdot \vec{E} \quad (1.16)$$

in cui  $\vec{d}$  è il momento elettrico di dipolo ed  $\vec{E}$  il campo elettrico presente in cavità. Allora l'hamiltoniana di interazione che si ottiene quantizzando l'equazione (1.16) è:

$$\hat{H}_{INT} = \hbar g (\hat{b} + \hat{b}^\dagger) (\hat{a} + \hat{a}^\dagger) \quad (1.17)$$

in cui  $\hat{a}(\hat{a}^\dagger)$  è l'operatore di distruzione (creazione) dei fotoni in cavità,  $\hat{b}(\hat{b}^\dagger)$  è quello di distruzione (creazione) per il sistema,  $g$  è la costante di accoppiamento dipolo-cavità.

Nel caso di interazione di  $N$  sistemi a due livelli, come descritto prima, l'equazione (1.17) può essere così generalizzata:

$$\hat{H}_{INT} = \hbar g \sum_{i=1}^N (\hat{b}_i + \hat{b}_i^\dagger) (\hat{a} + \hat{a}^\dagger) \quad (1.18)$$

e l'Hamiltoniana di Dicke, dalla (1.15), si riscrive come [9]:

$$\hat{H}_D = \hbar \omega_c \hat{a}^\dagger \hat{a} + \hbar \omega_0 \sum_{i=1}^N \hat{b}_i^\dagger \hat{b}_i + \hbar g \sum_{i=1}^N (\hat{b}_i + \hat{b}_i^\dagger) (\hat{a} + \hat{a}^\dagger) \quad (1.19)$$

dove  $\omega_0$  e  $\omega_c$  sono le frequenze di risonanza rispettivamente del materiale e della cavità.

Nell'equazione (1.19) il termine di interazione può essere semplificato con la *Rotating Wave Approximation* (RWA): in questa approssimazione i termini rapidamente oscillanti,  $\hat{b}^\dagger \hat{a}^\dagger$  e  $\hat{b} \hat{a}$ , vengono trascurati e questo implica che stati ibridi doppiamente eccitati non siano permessi. La nuova formulazione dell'Hamiltoniana così approssimata prende il nome di modello di Tavis-Cummings [10]:

$$\hat{H}_{TC} = \hbar \omega_c \hat{a}^\dagger \hat{a} + \hbar \omega_0 \sum_{i=1}^N \hat{b}_i^\dagger \hat{b}_i + \hbar g \sum_{i=1}^N (\hat{b}_i^\dagger \hat{a} + \hat{b}_i \hat{a}^\dagger) \quad (1.20)$$

Poichè l'Hamiltoniana di Tavis-Cummings commuta con l'operatore numero totale  $\hat{n} = \hat{a}^\dagger \hat{a} + \sum_{i=1}^N \hat{b}_i^\dagger \hat{b}_i$ , ossia  $[\hat{H}_{TC}, \hat{n}] = 0$ , è possibile scrivere i suoi autostati come una combinazione lineare di stati con lo stesso numero totale di eccitazioni, siano esse del sistema atomico o fotoniche.

Il generico stato  $|\psi\rangle$  del sistema accoppiato può essere pertanto scritto come:

$$|\psi\rangle = \alpha |G, 1\rangle + \sum_{i=1}^N c_i |e_i, 0\rangle \quad (1.21)$$

in cui  $|G, 1\rangle$  è lo stato in cui gli  $N$  sistemi a due livelli del materiale sono nel loro stato fondamentale  $|G\rangle$  e c'è un fotone in cavità, mentre  $\sum_{i=1}^N |e_i, 0\rangle$  corrisponde allo stato in cui ogni dipolo del materiale è nel suo primo stato eccitato  $|e_i\rangle$  e la cavità è nel suo ground state  $|0\rangle$ .

Facendo agire l'hamiltoniana  $\hat{H}_{TC}$  dell'equazione (1.20) sullo stato  $|\psi\rangle$ , e imponendo le condizioni di normalizzazione<sup>3</sup>, si ottengono le espressioni degli autostati *Upper Polariton e Lower Polariton*, i cui autovalori sono:

$$E_{UP} = \frac{\hbar}{2}(\omega_0 + \omega_c + \sqrt{(\omega_c - \omega_0)^2 + 4Ng^2}) \quad (1.22)$$

$$E_{LP} = \frac{\hbar}{2}(\omega_0 + \omega_c - \sqrt{(\omega_c - \omega_0)^2 + 4Ng^2}) \quad (1.23)$$

La separazione energetica tra i due stati polaritonici ( $E_{UP} - E_{LP}$ ) in condizioni di risonanza ( $\omega_c = \omega_0$ ), è nota come "frequenza di Rabi"  $\Omega_R$ :

$$\Omega_R = 2\sqrt{N}\hbar g \quad (1.24)$$

Gli autostati sono:

$$|UP\rangle = \chi_c(\omega_c, \omega_0) |G, 1\rangle + \chi_0(\omega_c, \omega_0) \sum_{i=1}^N |e_i, 0\rangle \quad (1.25)$$

$$|LP\rangle = \chi_c(\omega_c, \omega_0) |G, 1\rangle - \chi_0(\omega_c, \omega_0) \sum_{i=1}^N |e_i, 0\rangle \quad (1.26)$$

In queste espressioni i coefficienti  $\chi_c(\omega_c, \omega_0)$  e  $\chi_0(\omega_c, \omega_0)$  dipendono dalle frequenze di risonanza dei due sistemi disaccoppiati.

Si sottolinea il fatto che, poichè nell'hamiltoniana di Tavis-Cummings compaiono termini risonanti di interazione luce-materia, i suoi autostati non sono quelli del fotone e del materiale imperturbato, bensì sono una combinazione lineare di questi. Pertanto gli stati polaritonici che si formano dall'accoppiamento forte luce-materia sono stati ibridi delocalizzati, che ereditano caratteristiche di entrambe le parti costituenti.

I restanti  $N - 1$  autostati sono detti *Dark States* la cui espressione, non normalizzata, è:

$$|DS\rangle = \sum_{i=1}^N c_i |e_i, 0\rangle \quad (1.27)$$

---

<sup>3</sup>I coefficienti  $\alpha$  e  $c_i$  consentono a  $|\psi\rangle$  di rispettare la condizione di normalizzazione. Supporremo che il coefficiente  $c_i$  sia lo stesso  $\forall i = 1, \dots, N$ , ossia per tutte le eccitazioni del materiale.

con coefficienti che soddisfano  $\sum_{i=1}^N c_i = 0$ .

Col termine *Dark States* ci si riferisce a stati del materiale che non sono accessibili dal ground state: la transizione tra lo stato fondamentale del materiale a un Dark State è cioè proibita<sup>4</sup>. Trattandosi di stati che non possono assorbire o emettere fotoni, sono pertanto invisibili alla spettroscopia lineare.

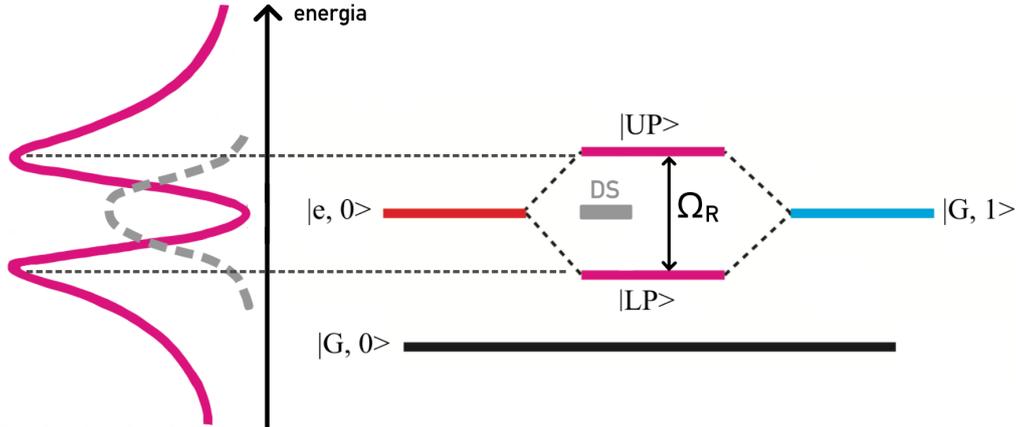


Figura 1.5: **Diagramma di energia dell'accoppiamento forte in cavità.** L'accoppiamento forte luce-materia porta alla formazione degli stati ibridi polaritonici Upper Polariton (UP) e Lower Polariton (LP), separati in energia dal Rabi splitting  $\Omega_R$ , e dei Dark States (DS) proibiti.

Basandoci sulle equazioni 1.22 e 1.23 sembrerebbe che l'accoppiamento forte tra luce e materia avvenga indipendentemente dal valore della costante di accoppiamento  $g\sqrt{N}$ . Invece, sperimentalmente si osserva che questo regime viene difficilmente raggiunto. Rispetto al caso teorico si deve infatti tener conto sia delle dissipazioni che incorrono quando si considera un sistema reale, sia del tempo di vita finito delle eccitazioni molecolari e fotoniche. Adattando l'hamiltoniana di Tavis-Cummings al caso reale riscrivendola in funzione dei tempi di decadimento  $\gamma_c$  e  $\gamma_m$ <sup>5</sup>, si ottiene una nuova espressione per lo splitting di Rabi per i sistemi dissipativi [11]:

$$\tilde{\Omega}_R = \sqrt{4Ng^2 - (\gamma_c - \gamma_m)^2} \quad (1.28)$$

L'equazione 1.28 permette di individuare una condizione ben precisa che distingue tra i regimi di weak e strong coupling: l'accoppiamento forte è raggiunto solo quando  $4Ng^2 > (\gamma_c - \gamma_m)^2$  ovvero quando  $\tilde{\Omega}_R$  assume un valore reale. Viceversa, per  $4Ng^2 < (\gamma_c - \gamma_m)^2$  l'accoppiamento è debole, in quanto  $\tilde{\Omega}_R$  diventa un valore immaginario e non si verifica alcun splitting energetico.

<sup>4</sup>Può essere dimostrato calcolando l'operatore momento di dipolo elettrico di transizione tra il ground state del materiale e il set di Dark States e verificando che si ottenga 0 come risultato.

<sup>5</sup>Significa riscrivere l'hamiltoniana dell'Eq. 1.20 mandando  $\omega_0 \rightarrow \omega_0 - i\gamma_m$  e  $\omega_c \rightarrow \omega_c - i\gamma_c$ .

# Capitolo 2

## Transfer Matrix

Obiettivo di questo capitolo è studiare la risposta spettrale di un campione semplice, costituito da un solo oscillatore, risonante con una cavità ottica in regime lineare. A tale scopo, si condurrà una simulazione utilizzando il metodo del *Transfer Matrix*. Questo approccio si dimostrerà capace di riprodurre il fenomeno del Rabi splitting, come previsto dalla teoria dell'accoppiamento forte.

### 2.1 Propagazione della luce in strutture multistrato

In questa sezione viene presentato il metodo del Transfer Matrix [7], il quale risolve le equazioni di Maxwell in strutture multistrato. Questo metodo permette quindi di studiare la propagazione di onde elettromagnetiche attraverso un sistema costituito da strati di materiali diversi e dunque con proprietà rifrattive differenti. Consideriamo un campo elettromagnetico, avente per ipotesi polarizzazione trasversa elettrica (TE)<sup>1</sup>, che si propaga lungo l'asse  $z$  in un mezzo costituito da un solo strato e di indice di rifrazione  $n$ .

Dalle equazioni di Maxwell è possibile ottenere questa espressione per il campo elettrico:

$$\frac{\partial^2 E}{\partial z^2} = -k_0^2 n^2 E \quad (2.1)$$

nella quale  $k_0 = k/n$  è il vettore d'onda nel vuoto. La soluzione generale dell'equazione (2.1) è:

$$E = E^+ e^{ikz} + E^- e^{-ikz} \quad (2.2)$$

---

<sup>1</sup>Il campo elettrico oscilla cioè parallelamente all'interfaccia.

dove  $E^+$  e  $E^-$  sono coefficienti generici. In modo analogo, dalle equazioni di Maxwell, si ricava la seguente relazione per il campo magnetico:

$$B = nE^+ e^{ikz} - nE^- e^{-ikz} \quad (2.3)$$

Supponiamo incidenza normale <sup>2</sup> e poniamoci all'interfaccia ( $z = 0$ ) tra due mezzi aventi indici di rifrazione  $n_0$  (sinistra) ed  $n_1$  (destra), come nella figura (2.1.A). Le ampiezze del campo incidente ( $E_0^+$ ), riflesso ( $E_0^-$ ) e trasmesso ( $E_1^+$ ) sono legate tra loro dalle equazioni:

$$E_0^+ + E_0^- = E_1^+ \quad (2.4)$$

$$(E_0^+ - E_0^-)n_0 = E_1^+ n_1 \quad (2.5)$$

Da queste è immediato ricavare il coefficiente di riflessione:

$$r = \frac{E_0^-}{E_0^+} = \frac{n_0 - n_1}{n_0 + n_1} \quad (2.6)$$

e il coefficiente di trasmissione:

$$t = \frac{E_1^+}{E_0^+} = \frac{2n_0}{n_0 + n_1} \quad (2.7)$$

che sono le note leggi di Fresnel, con le quali si definiscono anche la riflessione:

$$R = |r^2| \quad (2.8)$$

e la trasmissione<sup>3</sup>:

$$T = \frac{n_1}{n_0} |t^2| \quad (2.9)$$

Nel caso di sistemi costituiti da più strati (figura 2.1.B), i coefficienti di riflessione e di trasmissione si determinano iterando questo procedimento per ogni interfaccia. Tuttavia, risolvere le equazioni di Maxwell per ogni interfaccia richiede di gestire un numero significativo di equazioni: il metodo del Transfer Matrix permette di semplificare notevolmente tale calcolo.

---

<sup>2</sup>È il caso ipotizzato in tutte le simulazioni di Transfer Matrix svolte in questo lavoro di tesi.

<sup>3</sup>Il rapporto  $n_1/n_0$  deriva dalle diverse velocità della luce nei due mezzi.

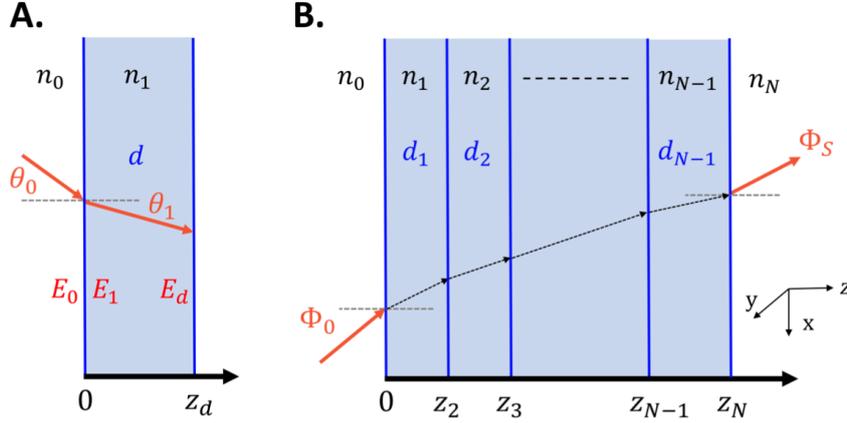


Figura 2.1: **Trasmissione attraverso un sistema a strati inclusa nelle simulazioni di Transfer Matrix.** La trasmissione avviene in un mezzo costituito da due strati nel caso (A) e più strati nel caso (B)[12].

Si introduca il vettore:

$$\vec{\Phi}(z) = \begin{pmatrix} E(z) \\ cB(z) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} E(z) \\ -\frac{i}{k_0} \frac{\partial E(z)}{\partial z} \end{pmatrix} \quad (2.10)$$

Si definisce la Transfer Matrix  $M_a$  di un mezzo di spessore  $a$  in modo da soddisfare:

$$M_a \vec{\Phi}|_{z=0} = \vec{\Phi}|_{z=a} \quad (2.11)$$

Sostituendo le equazioni (2.2) e (2.3) nella (2.11), si ottiene la matrice caratteristica  $M_a$ :

$$M_a = \begin{pmatrix} \cos(k\alpha) & \frac{i}{n} \sin(k\alpha) \\ in \sin(k\alpha) & \cos(k\alpha) \end{pmatrix} \quad (2.12)$$

Nel caso di un mezzo composto da  $N$  strati di spessori  $d_j$ , la matrice di trasferimento generale  $M$  è così ottenuta:

$$M = \prod_{i=1}^N M_i \quad (2.13)$$

dove  $M_i$  è la Transfer Matrix per lo strato  $i$ -esimo. Nella (2.13) l'ordine con cui si moltiplicano le matrici per ottenere  $M$  è inverso rispetto a quello in cui la radiazione attraversa gli strati.

Quando il sistema formato da  $N$  strati ha a sinistra un mezzo di indice di rifrazione  $n_{left}$  e a destra un mezzo di indice di rifrazione  $n_{right}$ , la (2.11) si riscrive come:

$$M \begin{pmatrix} 1 + r_s \\ n_{left}(1 - r_s) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} t_s \\ n_{right}t_s \end{pmatrix} \quad (2.14)$$

dove  $r_s$  e  $t_s$  sono i coefficienti di riflessione e trasmissione complessivi del sistema. Svolgendo il prodotto tra matrici, si ottengono:

$$r_s = \frac{n_{right}M_{11} + n_{left}n_{right}M_{12} - M_{21} - n_{left}M_{22}}{M_{21} - n_{left}M_{22} - n_{right}M_{11} + n_{left}n_{right}M_{12}} \quad (2.15)$$

$$t_s = 2n_{left} \frac{M_{12}M_{21} - M_{11}M_{22}}{M_{21} - n_{left}M_{22} - n_{right}M_{11} + n_{left}n_{right}M_{12}} \quad (2.16)$$

Infine, secondo le equazioni (2.8) e (2.9), la riflessione e la trasmissione cercati sono:

$$R = |r_s|^2 \quad (2.17)$$

$$T = \frac{n_{right}}{n_{left}} |t_s|^2 \quad (2.18)$$

## 2.2 Transfer Matrix per lo studio di un oscillatore singolo posto in cavità

La cavità ottica che si impiega nelle simulazioni può essere rappresentata come una struttura multistrato (figura 2.2). Questa cavità è composta da diversi strati disposti in successione: uno strato metallico (il primo specchio), seguito da uno strato di aria e dallo strato del materiale oggetto di studio (il campione), quest'ultimo separato da un altro strato di aria dal secondo metallo (il secondo specchio che definisce la cavità).

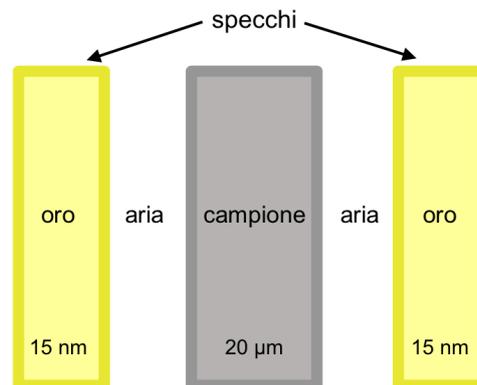


Figura 2.2: **Schema della struttura multistrato della cavità impiegata nelle simulazioni.** Gli spessori degli specchi e del campione, posto equidistante tra di essi, sono indicati.

### 2.2.1 Cavità vuota

Viene applicato il metodo del Transfer Matrix per ottenere lo spettro di trasmissione di una cavità ottica vuota risonante a  $\omega_c=2$  THz e delimitata da due specchi metallici, entrambi fatti di oro e spessi 15 nm.

Si ricorda dalla teoria spiegata nella sezione 1.1 che la radiazione subisce riflessioni multiple interne alla cavità, in quanto gli specchi la riflettono ripetutamente.

Ad ogni riflessione il campo acquista una fase, dando origine al fenomeno di interferenza: gli unici modi sostenuti sono quelli per cui l'interferenza è costruttiva (cioè quando la relazione 1.2 è soddisfatta). Pertanto lo spettro di trasmissione ottenuto (figura 2.3) presenta picchi in corrispondenza della frequenza del modo fondamentale  $\omega_c$  e dei suoi multipli, come atteso.

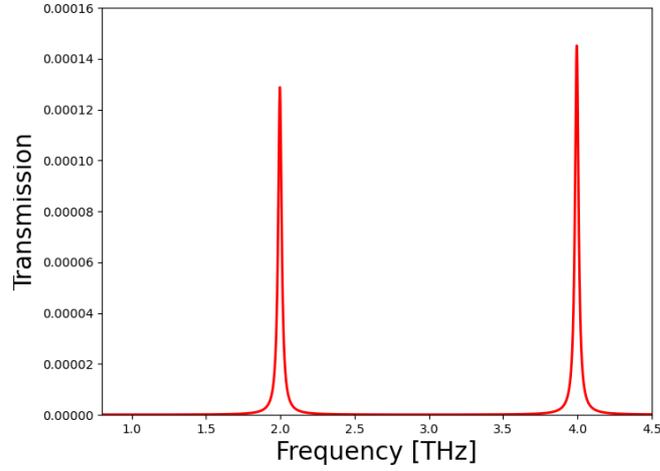


Figura 2.3: **Transfer Matrix applicato a una cavità vuota.** Spettro di trasmissione di una cavità vuota risonante a 2 THz.

## 2.2.2 Materiale

### Funzione dielettrica del materiale: il modello di Lorentz-Drude

Come funzione dielettrica  $\epsilon(\omega)$  del materiale è stata implementata l'espressione prevista dal modello di Lorentz-Drude [13]:

$$\epsilon(\omega) = \epsilon_{\infty} + \sum_{j=1}^N f_j \frac{\frac{Ne^2}{m}}{\omega_{0j}^2 - \omega^2 - i\omega\gamma_j} \quad (2.19)$$

in cui  $\epsilon_{\infty}$  è il termine dielettrico ad alta frequenza, mentre il secondo termine rappresenta il contributo degli  $N$  oscillatori. Il rapporto  $\sqrt{\frac{Ne^2}{m}} = \omega_p$  è la frequenza di plasma, mentre  $\gamma_j$ ,  $\omega_{0j}$  e  $f_j$  indicano rispettivamente la larghezza di banda, la frequenza e l'*oscillator strength*<sup>4</sup> del  $j$ -esimo oscillatore.

Essendo  $\epsilon(\omega)$  una quantità complessa, è possibile dividerla nelle due componenti reale ed immaginaria:

$$\epsilon(\omega) = \epsilon_1(\omega) + i\epsilon_2(\omega) \quad (2.20)$$

$$\epsilon(\omega) = \left[ \epsilon_{\infty} + \sum_{j=1}^N \frac{(\omega_{0j}^2 - \omega^2) f_j \omega_p^2}{(\omega_{0j}^2 - \omega^2)^2 + \omega^2 \gamma_j^2} \right] + i \left[ \sum_{j=1}^N \frac{\omega \gamma_j f_j \omega_p^2}{(\omega_{0j}^2 - \omega^2)^2 + \omega^2 \gamma_j^2} \right] \quad (2.21)$$

<sup>4</sup>Si tratta di una quantità legata alla probabilità che la radiazione venga assorbita e quindi indicativa di quanto forte sia l'accoppiamento luce-materia.

La parte reale della funzione dielettrica è legata alla capacità del materiale di deviare la luce elettromagnetica, causando effetti dispersivi, mentre la parte immaginaria è legata alle proprietà di assorbimento del materiale, contribuendo invece ai processi dissipativi.

Pertanto anche l'indice di rifrazione sarà una quantità complessa e funzione della frequenza, essendo esso definito come:

$$\tilde{n} = \sqrt{\epsilon(\omega)} = n + ik \quad (2.22)$$

con parte immaginaria  $k$  proporzionale al coefficiente di assorbimento.

### Oscillatore singolo

Nella simulazione è stata implementata la funzione dielettrica più semplice possibile, ottenuta ponendo  $j = 1$  nell'equazione 2.19, che descrive cioè un materiale costituito da un unico oscillatore. Si sono inoltre fissati i parametri  $\omega_p = 0.3$  THz e  $\gamma = 0.05\omega_0$  per un campione di spessore  $d_m = 20\mu\text{m}$ . Essendo interessati a studiare l'accoppiamento luce-materia in condizioni di risonanza, la frequenza naturale dell'oscillatore è stata presa pari a  $\omega_0 = 2$  THz, in modo da averla coincidente con quella della cavità.

Difatti lo spettro di trasmissione ottenuto con la matrice di trasferimento mostra che la trasmissione ha un minimo alla frequenza di risonanza, e torna invece ad 1 per  $\omega \neq \omega_0$ :

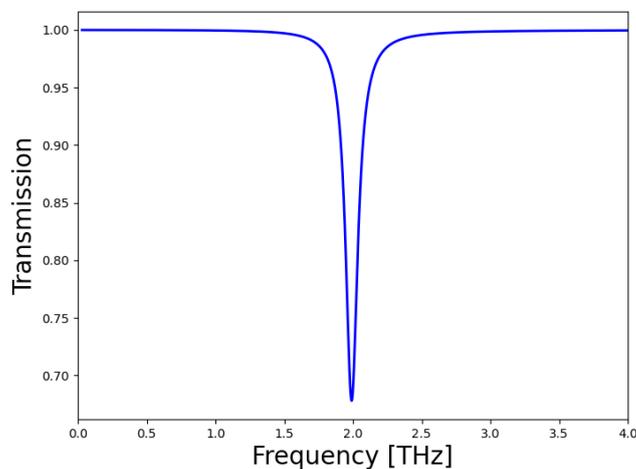


Figura 2.4: **Trasmissione di un oscillatore fuori dalla cavità.** Spettro di trasmissione di un oscillatore spesso  $d_m = 20\mu\text{m}$  e risonante a  $\omega_0 = 2$  THz, con  $\omega_p = 0.3$  THz e  $\gamma = 0.05\omega_0$ .

### 2.2.3 Oscillatore singolo in cavità

Quando la frequenza della cavità  $\omega_c$  è uguale alla frequenza naturale del materiale  $\omega_0$  che viene posto all'interno (che è il caso implementato, come già mostrato nei grafici 2.3 e 2.4), il risultato che ci aspetteremmo di vedere nella simulazione, per la teoria spiegata nella sezione 1.3.2, è un *Rabi splitting*.

Lo spettro ottenuto in condizione di risonanza mostra invece un discostamento del picco di trasmissione della cavità dalla frequenza di risonanza (figura 2.5).

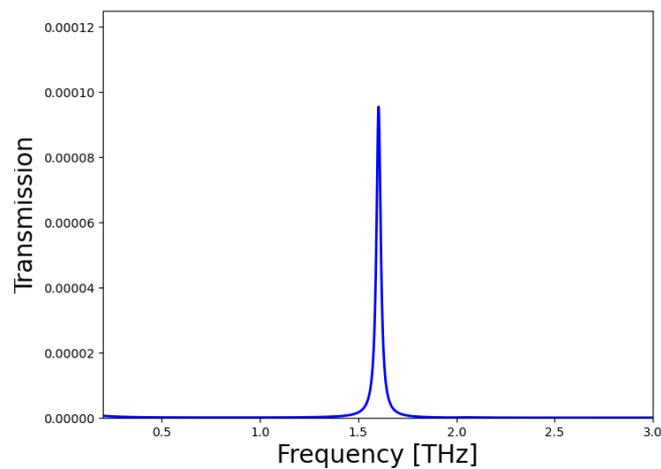


Figura 2.5: **Trasmissione del campione in cavità.** Lo spettro mostra uno shift da  $\omega_c$  del picco di trasmissione della cavità.

La condizione di risonanza viene infatti modificata dalla presenza del campione in cavità: lo spessore finito del materiale ritarda la radiazione elettromagnetica che lo sta attraversando, aumentandone il cammino ottico.

Come conseguenza di ciò, la frequenza di risonanza della cavità vuota non coincide con quella in presenza del campione: da qui nasce la difficoltà di determinare la distanza a cui posizionare gli specchi rispetto al campione affinché la frequenza portante della cavità, con campione posto all'interno, sia effettivamente risonante a 2 THz.

Per tale motivo, si sviluppa un protocollo per correggere la distanza tra gli specchi, intervenendo cioè sul *detuning* della cavità. Si pone uguale a zero la frequenza di plasma  $\omega_p$ , in modo che nell'equazione 2.21 venga eliminata la dipendenza della funzione dielettrica dalla frequenza e il contributo degli  $N$  oscillatori. In questo modo  $\epsilon_\infty$  costituisce l'unico contributo alla  $\epsilon(\omega)$ . Pertanto, porre la frequenza di plasma nulla equivale ad annullare del tutto la parte immaginaria dell'indice di

rifrazione, che si è visto essere responsabile dell'assorbimento della luce e, poiché  $\epsilon_\infty$  rappresenta la componente dominante della parte reale della funzione dielettrica, equivale anche a lasciare la parte reale approssimativamente invariata. La radiazione che attraversa il campione in cavità non verrà più assorbita (in quanto si è mandato a zero tutto l'assorbimento) ma continuerà ad essere ritardata (la componente dispersiva dell'indice di rifrazione del materiale che aumenta il cammino ottico della luce è ancora presente).

Apportando questa modifica all'indice di rifrazione e calcolando una nuova Transfer Matrix, si può ottenere una mappa 2D della trasmissione della cavità (che può essere pensata come vuota avendo posto  $\omega_p = 0$ ) in funzione del detuning della cavità, presentata in figura 2.6a.

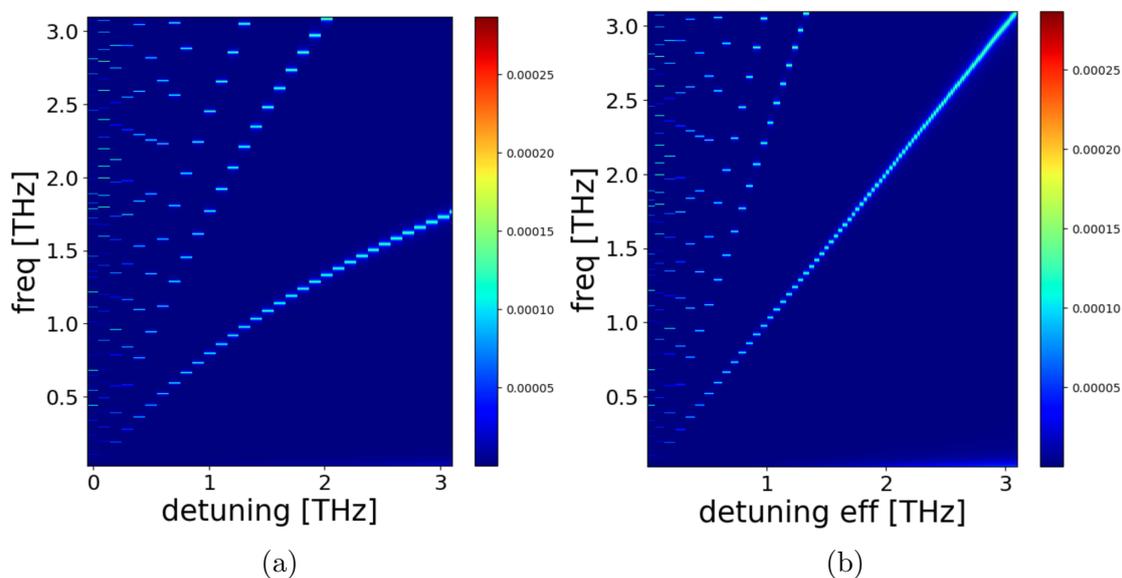


Figura 2.6: **Intensità della trasmissione con assorbimento nullo della radiazione da parte del materiale.** L'intensità è espressa in funzione del detuning nel caso (a) e del detuning corretto nel caso (b). In (a) le curve sono non diagonali, in (b) il modo fondamentale è sulla diagonale.

Per ogni distanza tra gli specchi fissata, un taglio verticale in questa mappa corrisponde a uno spettro come quello mostrato nell'immagine 2.5. Per un dato detuning, la frequenza di risonanza corrispondente al primo picco di trasmissione intersecato<sup>5</sup> è quindi quella che si trova con un detuning corretto, ossia quella corrispondente a una lunghezza della cavità che ha al suo interno un campione di spessore finito ma con solo proprietà dispersive.

Ricalcolando la matrice di trasferimento con i detuning riscaldati ottenuti, si con-

<sup>5</sup>Il primo picco è quello corrispondente al modo fondamentale ( $m = 1$ ), su cui ci concentriamo.

stata che la frequenza di risonanza della cavità così definita corrisponde al 2THz voluto (la bisettrice più bassa in figura 2.6b, che corrisponde al primo modo di cavità, conferma che la condizione di risonanza è ora rispettata).

Ottenuti i detuning effettivi della cavità, si ritorna alla condizione in cui il materiale ha anche proprietà di assorbimento: il Transfer Matrix riproduce lo splitting di Rabi nella mappa 2.7a in condizioni di risonanza ( $\omega_c = \omega_0 = 2$  THz), caso in cui la differenza tra le energie dei due polaritoni è minima.

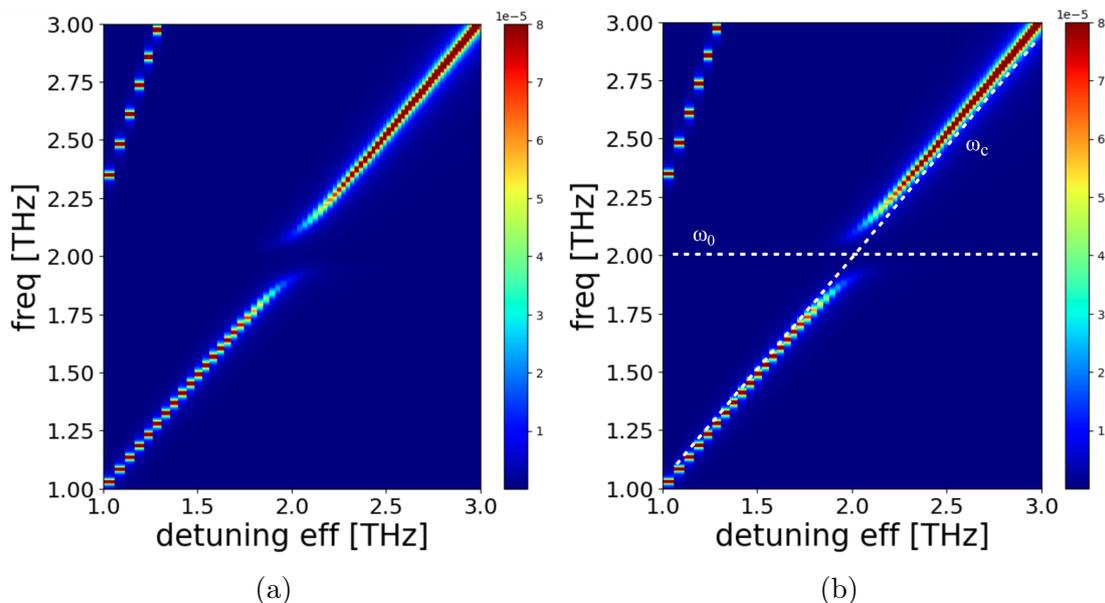


Figura 2.7: **Intensità della trasmissione in cavità con materiale con  $\omega_p \neq 0$  in funzione dei detuning corretti.** In (b) le linee tratteggiate in bianco indicano le frequenze  $\omega_0$  e  $\omega_c$  dei sistemi disaccoppiati a cui tendono gli stati polaritonici fuori risonanza.

Come invece evidenziato nella figura 2.7b, per  $\omega_c \neq \omega_0$  ovvero lontano dalla risonanza, le energie dei polaritoni tendono asintoticamente a quelle del sistema disaccoppiato.

Il taglio a 2THz riportato in figura 2.8 mostra lo splitting del picco di trasmissione della cavità in due picchi in corrispondenza dei stati polaritonici *Upper* e *Lower Polariton*, equidistanziati da  $\omega_0$  di una quantità pari a  $\Omega_R/2$ .

Per  $\omega = \omega_0$  la curva raggiunge invece un minimo assoluto: gli stati con questo particolare autovalore di energia sono i già citati Dark States.

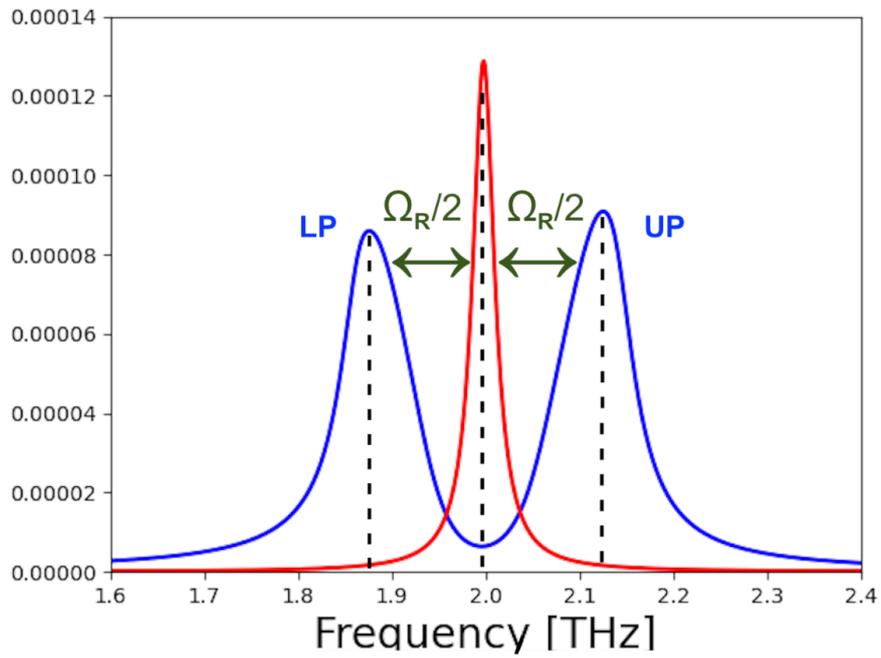


Figura 2.8: **Splitting di Rabi.** Il grafico in rosso rappresenta la trasmissione della cavità vuota, in blu quella del sistema ibrido: il sistema accoppiato non trasmette alla frequenza della cavità disaccoppiata bensì a due frequenze equidistanziate da  $\omega_0=2$  THz di una quantità  $\Omega_R/2$ .

# Capitolo 3

## Cuprati superconduttori

In questo capitolo viene descritta la famiglia dei cuprati, a cui appartiene il superconduttore ad alta temperatura critica  $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ , anche abbreviato con Bi-2212. Questo materiale verrà preso come campione nelle simulazioni di Transfer Matrix (svolte nel capitolo successivo) per poterne studiare la risposta lineare in cavità risonanti nella regione del THz. Per questo motivo, ne presentiamo qui la struttura cristallina e le proprietà ottiche all'equilibrio nella regione del THz.

### 3.1 Diagramma di fase dei cuprati

I cuprati sono materiali ceramici costituiti da strati di ossido di rame ( $CuO_2$ ), comuni a tutti i materiali appartenenti a questa famiglia, separati da strati distanziatori di varia composizione chimica. I piani Cu-O determinano la maggior parte delle proprietà superconduttive e, in particolare, all'aumentare del numero di piani Cu-O per cella unitaria aumenta il valore massimo della temperatura critica del materiale.

Per osservare il comportamento superconduttivo dei cuprati è necessario drogarli: la drogatura si riferisce alla sostituzione chimica di elementi o alla variazione di concentrazione di atomi di ossigeno, comportando in entrambi i casi la formazione di lacune. Modificando il drogaggio del materiale, che equivale quindi ad alterare la concentrazione delle lacune, è possibile ottenere fasi con proprietà macroscopiche estremamente diverse. Un tipico diagramma di fase, che mostra la temperatura  $T$  in funzione del drogaggio  $p$  del cuprato, è riportato in figura 3.1.

A bassi livelli di drogaggio (l'area gialla del diagramma, per  $p < 0.05$ ) i cuprati sono antiferromagnetici (AF) e isolanti di Mott, ossia rientrano nella categoria di materiali per i quali la teoria a bande prevede un comportamento da conduttore elettrico ma che mostrano invece proprietà isolanti.

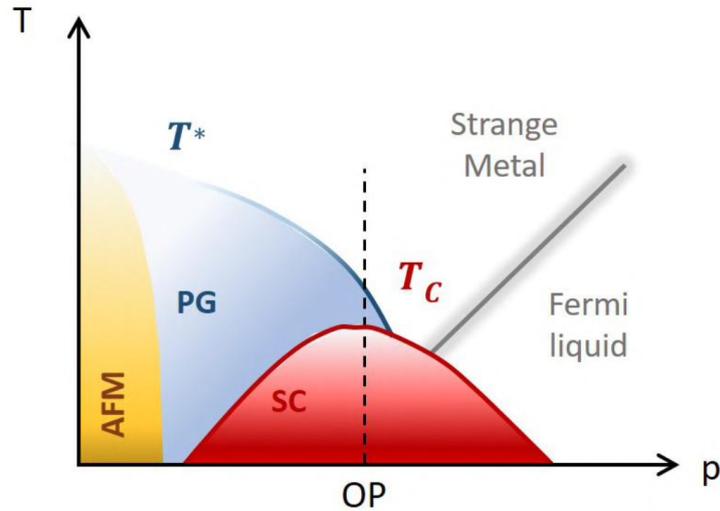


Figura 3.1: **Diagramma di fase dei cuprati** [14]. A bassi livelli di drogaggio  $p$ , i cuprati sono isolanti e antiferromagnetici. Per valori crescenti di  $p$ , diventano superconduttori al di sotto di  $T_C$  ed entrano invece nella fase di pseudogap per  $T_C < T < T^*$ . Al di sopra di  $T^*$  si comportano come metalli strani e, a drogaggi elevati, entrano gradualmente nella fase di liquido di Fermi.

Infatti, in un cuprato non drogato, il rame ha una configurazione elettronica  $3d^9$  (ogni atomo di Cu perde 2 elettroni a causa dell'elevata elettronegatività dell'ossigeno): per via del numero dispari di elettroni, la teoria delle bande prevederebbe che questo composto sia un metallo, invece il materiale è un isolante con un ampio gap energetico dell'ordine di 2 eV [15]. Questa discrepanza di comportamento è dovuta al fatto che la teoria delle bande non tenga conto delle correlazioni elettroniche. Quando tali correlazioni vengono invece considerate nella descrizione del materiale, il carattere isolante è attribuibile alla repulsione coulombiana che si esercita tra gli elettroni, che li rende fortemente localizzati nelle loro posizioni atomiche. Ciò comporta l'apertura di un gap energetico (SC gap) nella struttura del materiale, conferendogli proprietà isolanti.

I cuprati perdono la loro identità di isolanti di Mott quando viene aumentata la concentrazione di drogaggio: aumentando  $p$ , i cuprati attraversano una transizione di fase verso uno stato superconduttivo al di sotto della temperatura critica  $T_C$ . La superconduttività si manifesta nella cosiddetta "cupola superconduttiva", colorata di rosso nell'immagine. La temperatura critica  $T_C$  raggiunge il suo valore massimo alla concentrazione di drogaggio ottimale  $p \sim 0.16$  (optimal doping OP), mentre presenta curve discendenti sia nella regione di sopra-drogaggio (overdoped OP) che di sotto-drogaggio (underdoped UP).

La transizione dalla fase di isolante di Mott a quella superconduttiva, nella quale

gli elettroni si accoppiano formando coppie di Cooper, è quindi resa possibile dal doping. L'introduzione controllata di impurità nel materiale, infatti, crea degli stati<sup>1</sup> all'interno del gap di Mott, che permettono alle coppie di Cooper di attraversare il gap di carica e di fluire attraverso il materiale senza resistenza elettrica. Nei cuprati la gap superconduttiva SC è accompagnata da un'ulteriore gap, la cui presenza distingue questa classe di materiali dai superconduttori BCS, detta pseudogap (PG). Nel diagramma di fase questa regione è ombreggiata in blu: la sua chiusura è segnata dalla temperatura  $T^*$  ma senza avere un contorno ben definito, estendendosi in tutta la regione UP e talvolta anche al drogaggio ottimale, non venendo invece osservata nei materiali sovradrogati (OD).

La pseudogap possiede proprietà che non sono tipiche né della fase superconduttiva né di quella metallica. Misure di spettroscopia NMR hanno rilevato la presenza della gap superconduttiva anche al di sopra della temperatura critica, dove le proprietà superconduttive macroscopiche svaniscono. Inoltre, la resistività, che nei superconduttori convenzionali ci si aspetta che sia lineare in T per  $T > T_C$  e che collassi alla temperatura critica, nei HTSC si discosta da entrambi i comportamenti in una regione di temperatura [16] (figura 3.2).

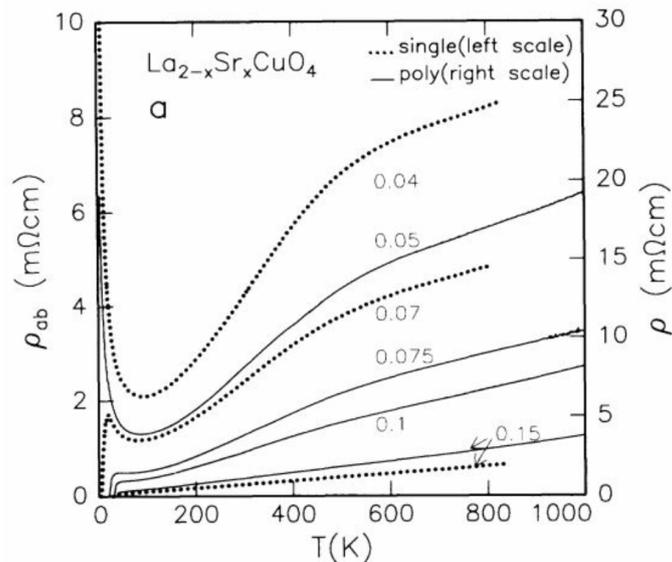


Figura 3.2: **Resistività in funzione della temperatura nella regione di pseudogap [16]**. La resistività del campione di LSCO al doping ottimale ( $p = 0.15$ ) ha un comportamento lineare in T; invece quella in caso di LSCO underdoped ( $0 \leq p \leq 0.15$ ) devia dal comportamento lineare in fase di pseudogap.

<sup>1</sup>La natura di questi stati non è ancora chiara, ma sono probabilmente dovuti al salto (*hopping*) di un elettrone dall'orbitale d del rame a quello p dell'ossigeno.

Un comportamento analogo si osserva anche nell'andamento del calore specifico, il quale per  $T > T_C$  è lineare in  $T$  nei superconduttori convenzionali, ma nella fase di pseudogap si discosta da tale comportamento.

Tuttavia, nella fase di PG la superconduttività non si manifesta macroscopicamente: nonostante siano trascorsi quasi 40 anni dalla scoperta della superconduttività ad alta temperatura nei cuprati, tuttora non esiste un consenso sulla relazione che intercorre tra lo pseudogap e la fase superconduttiva. Una corrente di pensiero sostiene l'assenza di correlazione tra le due fasi, mentre un'altra corrente ritiene che lo pseudogap sia il primo stadio della formazione della superconduttività. In altre parole, si ritiene che le coppie di Cooper si formino durante la fase di pseudogap ma non si muovano in fase all'interno del materiale. La mancanza di coerenza nel movimento degli elettroni accoppiati è considerata il motivo principale per cui la superconduttività non si manifesta a livello macroscopico durante questa fase.

## 3.2 Bi-2212

### 3.2.1 La struttura cristallina

L'ossido di bismuto-stronzio-calcio-rame  $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ <sup>2</sup>, comunemente abbreviato con Bi-2212, è un cuprato superconduttore ad alta temperatura critica. Il Bi-2212 ha una struttura cristallina complessa, come si evince dalla figura 3.3, la quale mostra la metà superiore della cella primitiva<sup>3</sup>. Quest'ultima presenta una struttura ortorombica, i cui assi cristallografici  $a$  e  $b$  sono nel piano Cu-O, mentre l'asse principale  $c$  è perpendicolare a questi (le dimensioni dei tre assi sono rispettivamente  $a = b = 5.4\text{\AA}$  e  $c = 30.6\text{\AA}$ ). La cella elementare è inoltre costituita da due piani di ossido di rame, in ognuno dei quali l'atomo di Cu è circondato da cinque atomi di O secondo una disposizione piramidale. I blocchi composti dai piani Sr-Ca-Cu-O sono intervallati dai piani Bi-O.

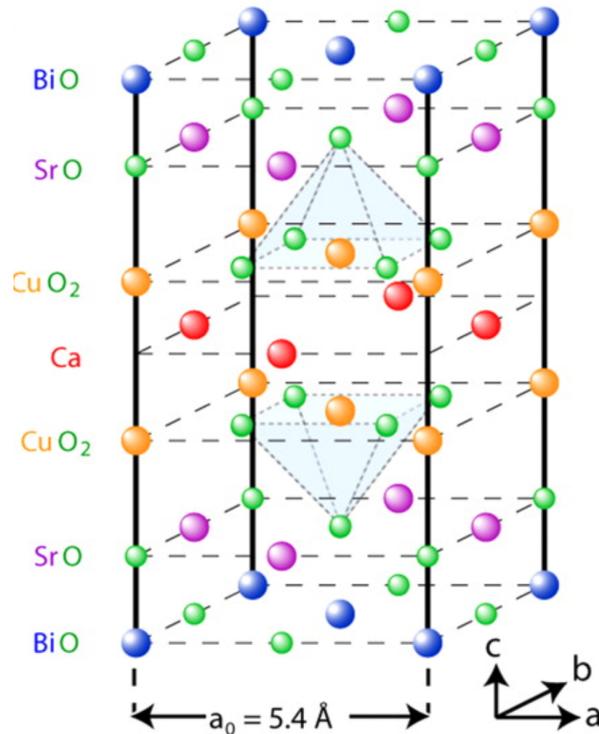


Figura 3.3: **Struttura cristallina del Bi-2212** [17]. In figura è rappresentata la metà superiore della cella unitaria del Bi-2212. Gli assi cristallografici  $a$ ,  $b$  e  $c$  sono indicati.

<sup>2</sup> $\delta$  indica il livello di drogaggio ottenuto modificando la concentrazione di ossigeno.

<sup>3</sup>La metà inferiore della cella è identica tranne che per una traslazione di  $a_0/2$  lungo l'asse  $a$ .

Il Bi-2212 deve essere drogato da un eccesso di atomi di ossigeno per diventare superconduttore: il contenuto di drogaggio  $\delta$  influisce fortemente sulle proprietà macroscopiche del Bi-2212, il cui diagramma di fase segue l'andamento già visto nella sezione 3.1. Per  $0.05 < \delta < 0.26$ , il sistema subisce una transizione superconduttiva quando raffreddato: in questo intervallo di valori il livello di drogaggio ottimale, ossia la concentrazione  $\delta$  per la quale il composto mostra la sua temperatura critica massima, è  $\delta_c = 0.16$ . Al doping ottimale, la temperatura critica del superconduttore è  $T_C = 91$  K. Infine, una fase di pseudogap è rilevata nella regione underdoped e di optimal doping.

### 3.2.2 Funzione dielettrica di bassa energia

Affinchè il Bi-2212 possa essere studiato in simulazioni di Transfer Matrix, è essenziale conoscerne la funzione dielettrica a bassa energia. La sua espressione è stata derivata dal paper “*Dynamics of Cooper pair formation in  $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$* ” [18], nel quale vengono riportate le misure delle proprietà ottiche nel range del THz per un campione di Bi-2212 quasi optimally-doped ( $T_C \approx 88K$ ).

In un intervallo di temperature che si estende dallo stato di pseudogap ( $T = 95K$ ) fino ad un valore ben al di sotto di  $T_C$  ( $T = 6K$ ), la conducibilità  $\sigma(\omega)$  di questo materiale è ben descritta dal modello a due fluidi [18]:

$$\sigma(\omega) = \rho_{QP} \left( \frac{1}{\frac{1}{\tau} - i\omega} \right) + \rho_S \left( \pi\delta(\omega) + \frac{i}{\omega} \right) \quad (3.1)$$

dove  $\rho_{QP}$  e  $\rho_S$  denotano rispettivamente la densità delle quasiparticelle e quella superfluida. Per delineare la natura di questi termini specificiamo che, mentre la parte immaginaria  $\sigma_2(\omega)$  descrive lo screening del campo applicato, la parte reale  $\sigma_1(\omega)$  della conducibilità ottica descrive invece la dissipazione dell'energia elettromagnetica nel materiale [19].

Secondo la teoria BCS<sup>4</sup>, tra i processi dissipativi che contribuiscono alla  $\sigma_1(\omega)$  in un superconduttore, vi sono quelli legati alla formazione di coppie di Cooper e allo scattering di quasiparticelle [20].

Infatti, a basse temperature, secondo questa teoria gli elettroni nei superconduttori si accoppiano per formare coppie di Cooper mediante lo scambio di un fonone [21]. La rottura di queste coppie libera elettroni disaccoppiati, le cosiddette quasiparticelle. Pertanto, nell'espressione 3.1 il primo termine rappresenta la risposta di Drude delle quasiparticelle con scattering rate  $\frac{1}{\tau}$ , mentre il secondo termine esprime la conduttività dovuta alle coppie di Cooper e che pertanto costituisce la risposta superfluida che emerge al di sotto di  $T_C$ .

---

<sup>4</sup>La teoria BCS (Bardeen-Cooper-Schrieffer) è una delle prime spiegazioni microscopiche della superconduttività ad essere stata avanzata.

Le quantità presenti nell'equazione 3.1 alle due temperature specificate sono ottenute dai fit dei dati sperimentali:

- $T = 95K \Rightarrow (\frac{\hbar^2}{\epsilon_0})\rho_{QP} = 0.75eV^2$ ,  $\frac{1}{\tau} = 3\text{THz}$
- $T = 6K \Rightarrow (\frac{\hbar^2}{\epsilon_0})\rho_{QP} = 0.255eV^2$ ,  $\frac{1}{\tau} = 1.20\text{THz}$ ,  $(\frac{\hbar^2}{\epsilon_0})\rho_S = 0.495eV^2$

La parte reale e quella immaginaria della conducibilità  $\sigma(\omega)$  vengono mostrate in Figura 3.4.

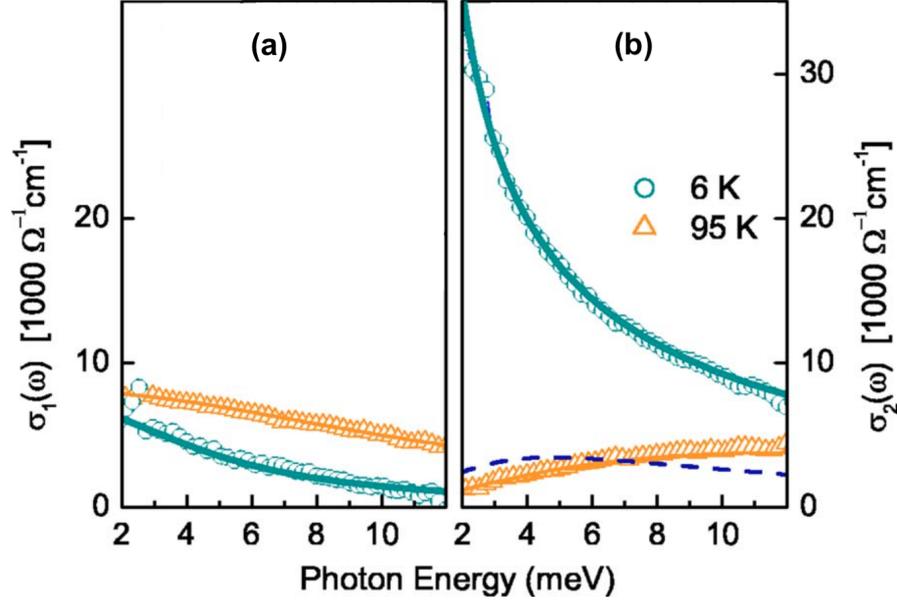


Figura 3.4: **Conducibilità ottica del Bi-2212 [18]**. In (a) parte reale  $\sigma_1(\omega)$  e in (b) parte immaginaria  $\sigma_2(\omega)$  della conducibilità del Bi-2212 (near optimally-doped) alle temperature  $T=95\text{K}$  (triangoli) e  $T=6\text{K}$  (cerchi).

Naturalmente, nota la conducibilità elettrica  $\sigma(\omega)$ , è possibile ricavare la funzione dielettrica del materiale sfruttando la relazione che lega queste due quantità [22]:

$$\epsilon(\omega) = 1 + \frac{i\sigma(\omega)}{\omega\epsilon_0} \quad (3.2)$$

È immediato ricavare anche l'indice di rifrazione che è definito come:

$$n = \sqrt{\epsilon(\omega)} \quad (3.3)$$

La conoscenza di queste funzioni permette di svolgere una simulazione di Transfer Matrix in cui studieremo la risposta lineare del Bi-2212 in cavità risonanti nella regione del THz.

# Capitolo 4

## Simulazioni di Transfer Matrix del Bi-2212 in cavità Terahertz

In questo capitolo adotteremo il metodo del Transfer Matrix per studiare le risposte spettrali del Bi-2212 nella fase di pseudogap e in quella superconduttiva. Verranno studiati gli spettri di trasmissione ottenuti nei due diversi stati del materiale e se ne analizzeranno le differenze, con l'obiettivo di individuare un'osservabile che permetta di tracciare otticamente la temperatura critica del superconduttore.

### 4.1 Trasmissione THz del Bi-2212

Punto di partenza della simulazione è stato verificare di aver implementato correttamente l'espressione 3.1 della conducibilità  $\sigma(\omega)$  del Bi-2212 nella fase di pseudogap ( $T = 95K$ ) e superconduttiva ( $T = 6K$ ). La conferma è stata data dal fatto che si siano ottenuti gli stessi andamenti della parte reale e di quella immaginaria riportati nel già citato paper "*Dynamics of Cooper pair formation in  $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$* " [18], come mostrato in 4.1. Ciò assicura di aver introdotto anche l'esatto indice di rifrazione del materiale, mediante l'uso delle relazioni 3.2 e 3.3.

Appurata la correttezza di queste espressioni, si è potuto procedere a studiare con il Transfer Matrix la trasmissione THz di spessori via via crescenti di Bi-2212 fuori cavità, con il fine di individuare uno spessore ragionevole da prendere in considerazione. L'andamento della trasmissione in funzione della frequenza, alle due temperature fissate, viene mostrato in figura 4.2.

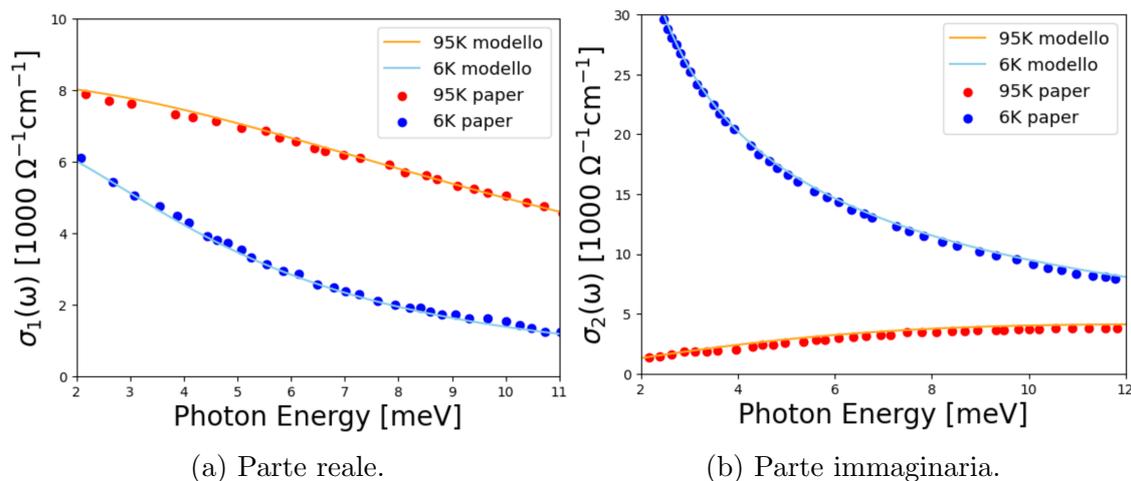


Figura 4.1: **Confronto tra i dati sperimentali del paper e del modello a due fluidi.** La sovrapposizione dimostra di aver implementato correttamente la parte reale  $\sigma_1(\omega)$  in (a) e la parte immaginaria  $\sigma_2(\omega)$  in (b) della conducibilità ottica del Bi-2212 nella simulazione.

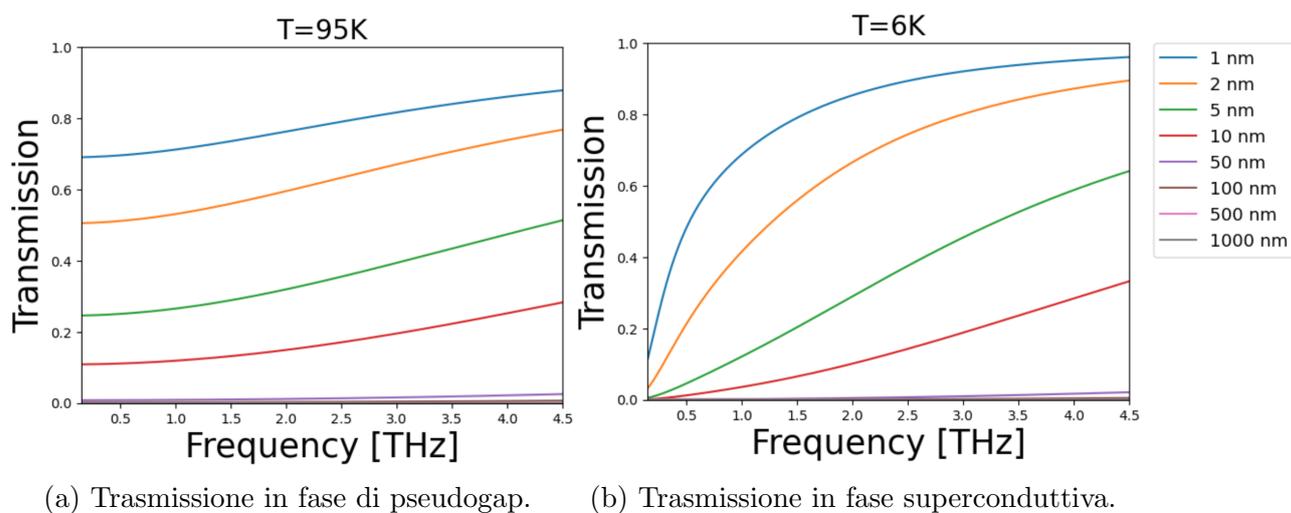


Figura 4.2: **Trasmissione THz del Bi-2212 fuori dalla cavità.** Andamento della trasmissione in funzione della frequenza per campioni di Bi-2212 spessi 1, 2, 5, 10, 50, 100, 500, 1000 nm alle temperature (a)  $T=95\text{K}$  e (b)  $T=6\text{K}$ .

Ad entrambe le temperature, la trasmissione nella regione del THz è trascurabile tranne che per spessori di campione di qualche nanometro. Un valore di spessore adeguato da usare per le simulazioni risulta essere ad esempio quello pari a 2 nm, che si è scelto di porre in cavità tra due specchi aventi anche questi spessore 2 nm.

Per soddisfare la condizione di risonanza quando il campione è all'interno della cavità, si segue il protocollo già illustrato nella sezione 2.2.3: per trascurare l'assorbimento della luce e considerarne solo la dispersione dovuta alla presenza del campione in cavità, viene mandata a zero la parte immaginaria dell'indice di rifrazione del Bi-2212. Avendo tenuto conto in questo modo dell'aumento del cammino ottico della luce, si ottengono le mappe 2D (figura 4.3) della trasmissione del campione in cavità alle due temperature fissate in funzione del detuning (corretto).

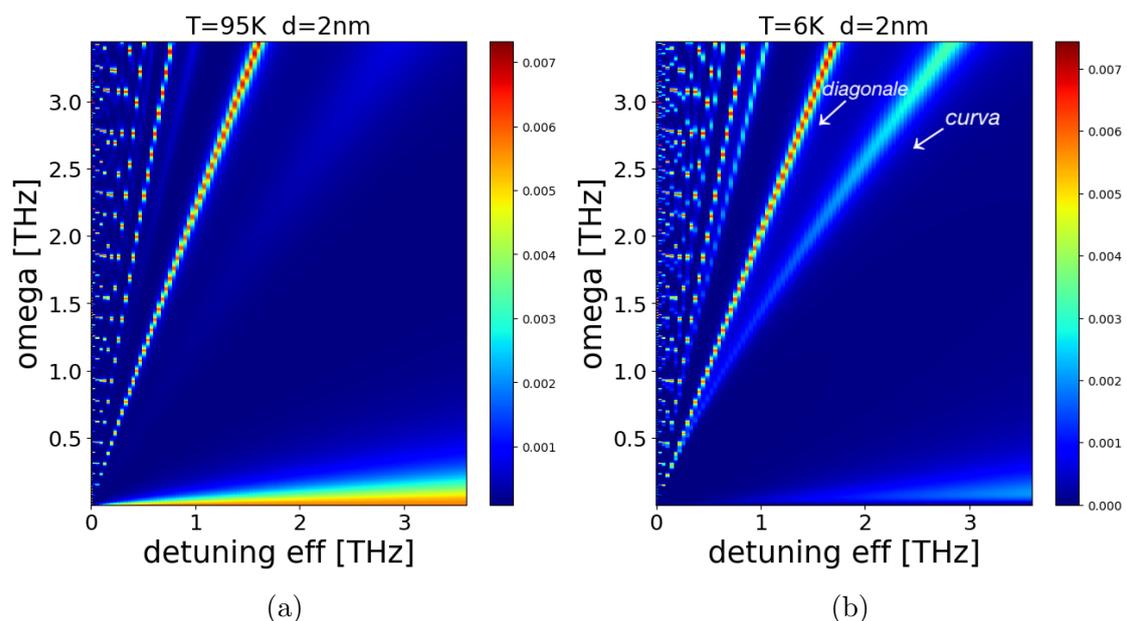


Figura 4.3: **Intensità della trasmissione di 2 nm di Bi-2212 in cavità.** L'intensità è mostrata in fase di pseudogap (a) e in fase superconduttiva (b).

È subito evidente che ciò che contraddistingue gli spettri di trasmissione alle due temperature è la presenza di un modo, che appare come una curva obliqua molto più intensa nella fase superconduttiva del materiale a 6K, e che affianca un modo diagonale invece molto più definito e comune ad entrambe le mappe.

Per cercare di comprendere la natura della prima curva citata, si è ripetuta la simulazione di Transfer Matrix a 6K per valori crescenti di spessori di Bi-2212 (figura 4.4).

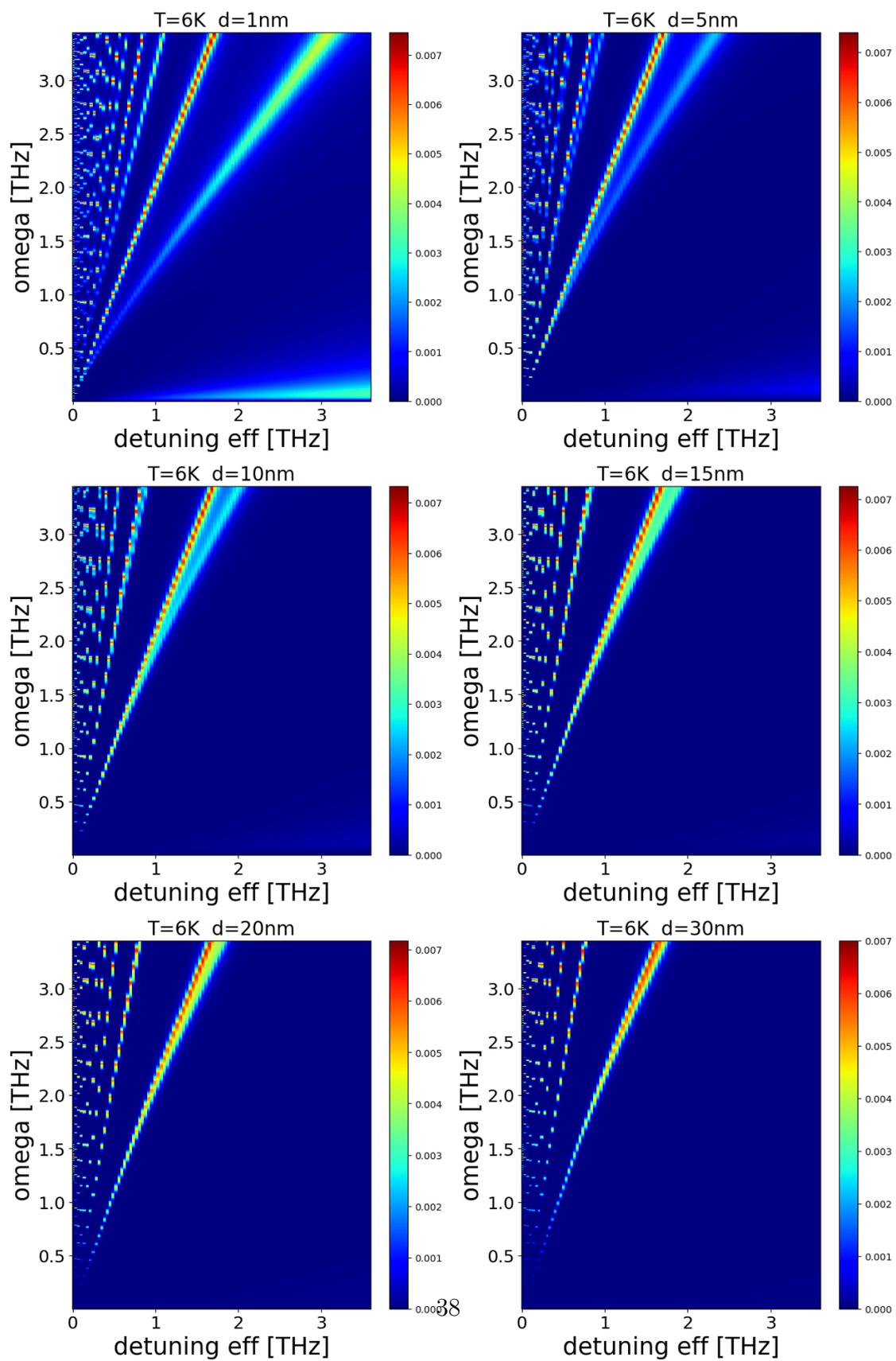


Figura 4.4: Intensità della trasmissione di spessori diversi di Bi-2212 in cavità in fase superconduttiva. Si mostrano le mappe ottenute a temperatura fissata (6K) per spessori via via crescenti di campione.

Aumentando lo spessore del campione, si osserva che il modo obliquo tende a salire progressivamente verso quello diagonale, fino a sparire completamente e fondersi con esso quando lo spessore del campione è pari a 30 nm.

Poniamo l'attenzione proprio al caso in cui lo spessore del Bi-2212 in cavità è di 30 nm, che è quello mostrato nell'ultima mappa in figura 4.4: per un fissato valore di detuning, il corrispondente picco di trasmissione ha una frequenza fondamentale doppia. Ad esempio, un taglio in corrispondenza del detuning a 1 THz corrisponde a un picco fondamentale alla frequenza di 2 THz. Poichè frequenza e lunghezza d'onda sono inversamente proporzionali<sup>1</sup>, la corrispondenza che si osserva è propria di una cavità la cui lunghezza è stata dimezzata rispetto a quella iniziale.

Il motivo per cui la lunghezza della cavità si riduce da  $L$  a  $L/2$  risiede nel fatto che il campione, che nella simulazione si ricorda essere posto al centro della cavità, ha uno spessore così significativo da permettere solo a una frazione molto ridotta della luce di oltrepassarlo. Di conseguenza, tutta la luce che raggiunge il campione ad  $L/2$  viene riflessa e ritorna al primo specchio: si può immaginare la cavità come dimezzata dal momento che non vi sono fotoni che attraversano il campione e che riescono ad arrivare al secondo specchio a distanza  $L$  (figura 4.5).

Pertanto, la frequenza fondamentale della cavità raddoppia perchè non è più quella associata alla lunghezza  $L$  bensì alla lunghezza  $L/2$ .

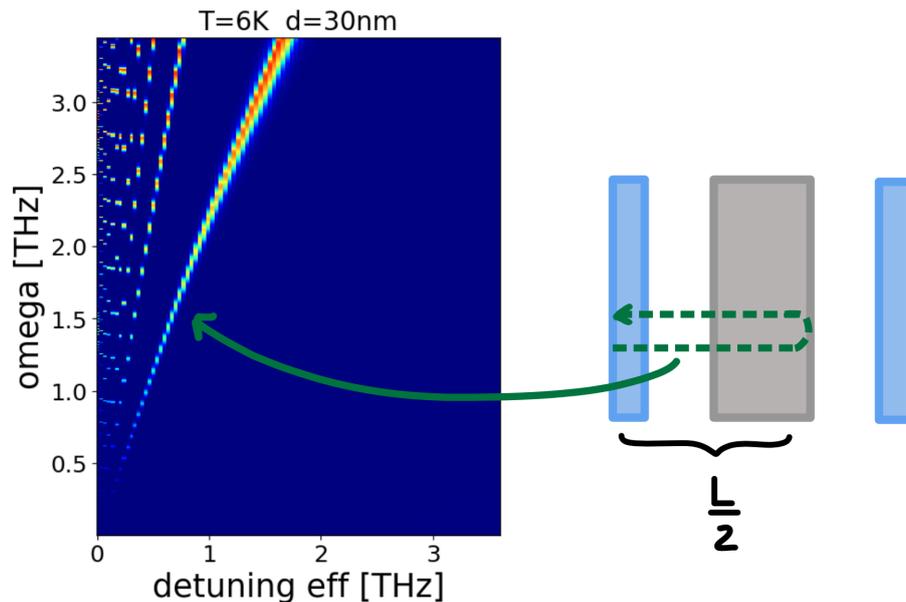


Figura 4.5: **Mappa e schema della cavità con un campione spesso 30 nm.** La lunghezza  $L$  della cavità è ridotta ad  $L/2$  in quanto il campione (in grigio) ha uno spessore tale da non trasmettere luce (linea tratteggiata in verde).

<sup>1</sup>Il loro prodotto è costante ed è uguale alla velocità di propagazione dell'onda.

Riducendo lo spessore del campione fino a 1 nm, il che equivale ad aumentare la trasmissione THz in cavità in quanto si permette a sempre più luce di attraversare il materiale, la diagonale si sdoppia in una curva che tende a diventare *quasi* una bisettrice (figura 4.6).

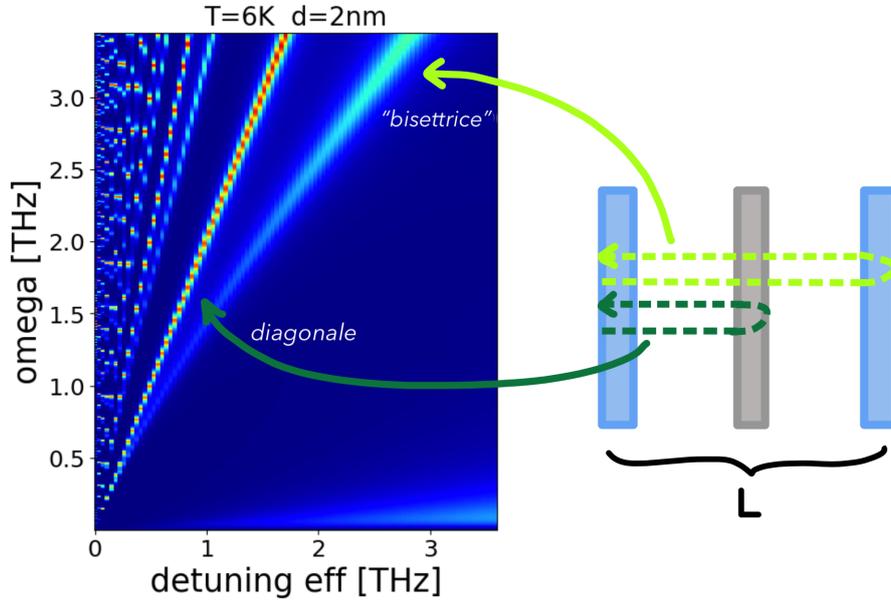


Figura 4.6: **Mappa e schema della cavità con un campione spesso 2 nm in fase superconduttiva.** Parte della luce (linea tratteggiata in verde scuro) non oltrepassa il campione (in grigio), giustificando la diagonale; la restante parte (tratteggiata in verde chiaro) riesce ad attraversarlo e a raggiungere il secondo specchio (in azzurro), originando così la "bisettrice".

Il fatto che non si tratti propriamente di una bisettrice trova giustificazione nel fatto che la figura 4.2 mostra che la trasmissione non è uguale per tutte le frequenze del THz: a prescindere dallo spessore del campione, in fase superconduttiva essa è prossima allo zero per basse frequenze. Ciò implica che venga dato maggiore peso alle componenti di alta frequenza e che per basse frequenze la diagonale e la quasi-bisettrice siano sovrapposte (ovvero che dominino sempre la mezza cavità).

L'origine di tale "bisettrice" è invece stata attribuita al fatto che il campione sia ora sufficientemente sottile da permettere ai fotoni di percorrere l'intera lunghezza  $L$  della cavità. A supporto di questa tesi vengono fatte nuove simulazioni nelle quali il campione, di fissato spessore 2 nm, viene spostato dal centro della cavità. Dal momento che la posizione degli specchi rimane invariata, la lunghezza della cavità e quindi la sua frequenza fondamentale non cambiano. Pertanto, se l'ipotesi avanzata è corretta, ci aspettiamo un cambio di pendenza solo per la diagonale e

non anche per la bisettrice.

Le mappe (figura 4.7) ottenute quando il campione è posto a una distanza  $L/3$  ed  $L/4$  dal primo specchio, confermano la tesi.

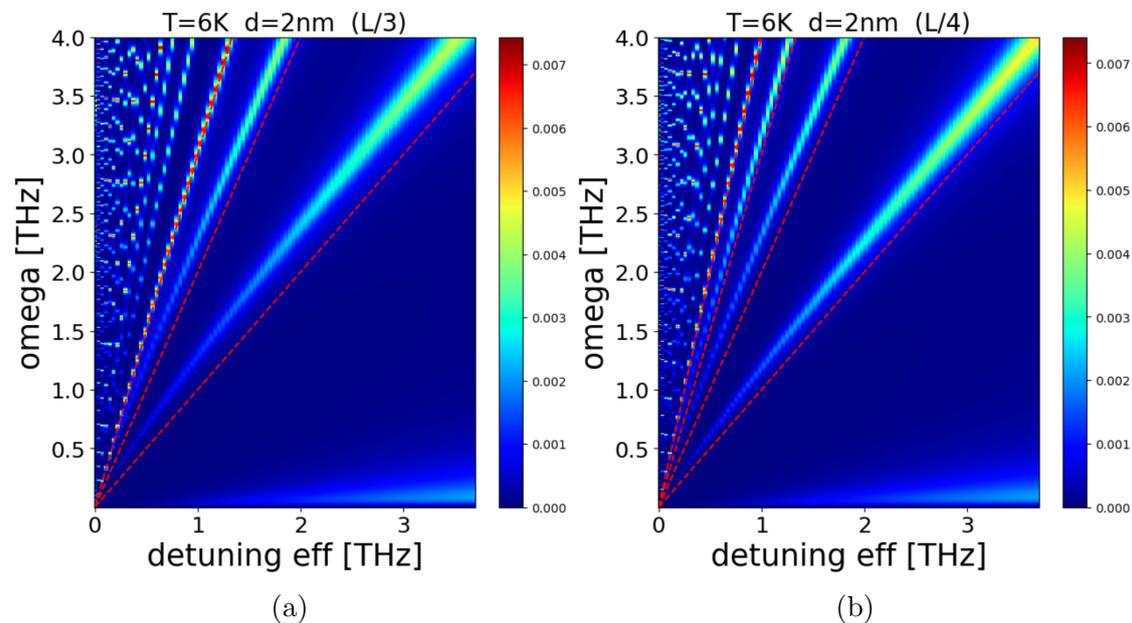


Figura 4.7: **Intensità della trasmissione quando il Bi-2212 non è al centro della cavità.** A temperatura fissata  $T=6K$ , in (a) e in (b) il campione dista rispettivamente  $L/3$  ed  $L/4$  dal primo specchio e la diagonale rispetta la relazione  $y=3x$  nel primo caso e  $y=4x$  nel secondo. Con le linee tratteggiate in rosso si vuole evidenziare che le "bisettrici" che si originano da fenomeni di interferenza costruttiva non sono propriamente tali.

È importante sottolineare che la chiara visibilità dei picchi che giacciono sulla "bisettrice" è propria solo della fase superconduttiva del campione, come mostrato dal confronto tra le mappe ottenute alle due temperature in figura 4.8.

Di conseguenza, con il Transfer Matrix si è trovato un metodo per capire in quale fase si trovi il Bi-2212. Supponiamo di avere il campione alla temperatura  $T=95K$  all'interno di una cavità ottica e di ottenerne la mappa 2D della trasmissione THz. Diminuendo la temperatura, sarà possibile riconoscere che il campione è entrato nella fase superconduttiva quando, nella mappa, oltre alla diagonale comparirà anche la "bisettrice". Pertanto, guardando il solo modo in cui la mappa evolve al variare della temperatura, siamo in grado di tracciare la temperatura critica del campione.

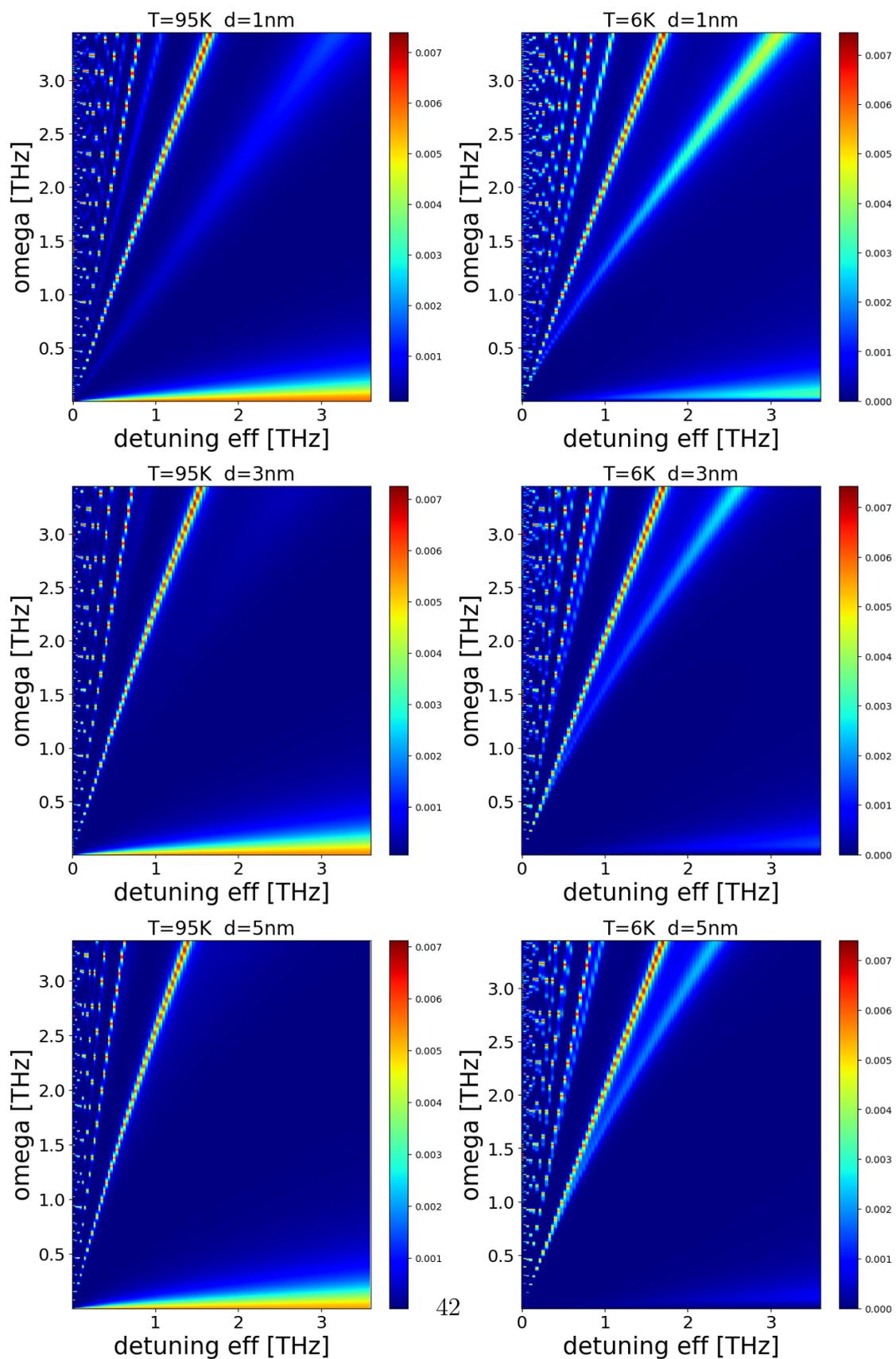


Figura 4.8: **Intensità delle trasmissioni di Bi-2212 in cavità.** Si mettono a confronto le mappe ottenute alle due diverse temperature per spessori crescenti di materiale: la "bisettrice" appare in modo evidente nelle mappe a 6K.

# Capitolo 5

## Misure ottiche della transizione superconduttiva in cavità

Nel capitolo 3 si è mostrato che i cuprati sono caratterizzati da un ricco diagramma di fase che li rende estremamente sensibili alle variazioni delle condizioni ambientali in cui si trovano. Per questo motivo, è stato condotto in laboratorio un esperimento per indagare se esiste una variazione della risposta nella fase superconduttiva in cavità del Bi-2212.

Nel presente capitolo, dopo aver motivato la scelta di adottare la tecnica pump-probe per l'esperimento, viene presentato il set-up sperimentale impiegato. Vengono infine mostrate le misure preliminari che sono state svolte per caratterizzare la transizione di fase nello spazio libero, ovvero in assenza di cavità.

### 5.1 La scelta della tecnica di pump-probe

Dalle simulazioni di Transfer Matrix svolte nella sezione precedente è emerso che, per avere una trasmissione del Bi-2212 nella regione del THz, è necessario che lo spessore del campione sia ridotto a pochi nanometri (figura 4.2).

Vista l'impossibilità di ottenere un campione con uno spessore così esiguo da porre in cavità, si è optato per la realizzazione di un esperimento di spettroscopia pump-probe in trasmissione. Questa tecnica spettroscopica sfrutta due brevi impulsi laser della durata di 10-100 fs, uno più intenso di pump (pompa) e uno meno intenso di probe (sonda): il primo viene impiegato per eccitare e perturbare il campione, portandolo in uno stato fuori dall'equilibrio, il secondo viene invece utilizzato per studiare la risposta ottica del sistema a istanti successivi alla perturbazione.

## 5.2 Set-up sperimentale

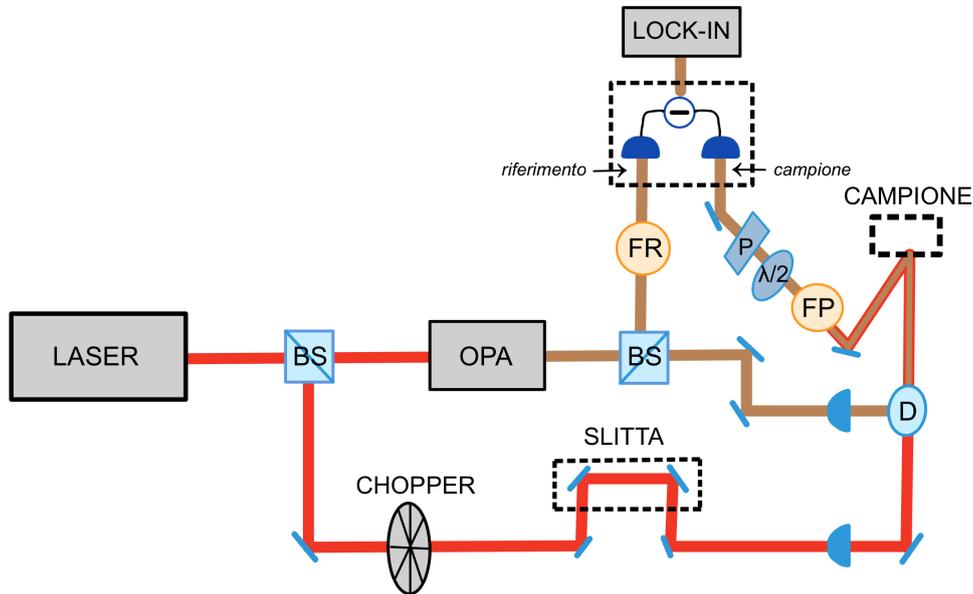


Figura 5.1: **Illustrazione del set-up dell'esperimento pump-probe.**

Una sorgente laser con repetition rate impostato a 1 kHz genera impulsi ultracorti di durata 290 fs e di lunghezza d'onda centrata a  $\lambda=1030$  nm. L'impulso così generato viene diviso da un beam splitter (BS), che ne riflette una parte nella direzione del chopper e che andrà a costituire il pump, e ne trasmette l'altra verso l'Optical Parametric Amplifier (OPA). Questo amplificatore ottico parametrico permette di ottenere impulsi in uscita di lunghezza d'onda variabile da 650 a 900 nm. Per l'esperimento, è stata selezionata una lunghezza d'onda di 790 nm per l'impulso, il quale arriverà direttamente sul detector rappresentando invece l'impulso probe di riferimento. L'intensità del riferimento viene ridotta da un filtro (FR) prima di raggiungere il detector.

I due impulsi pump e probe seguono percorsi ottici diversi in modo tale che uno arrivi in ritardo rispetto all'altro: il pump arriva infatti con un ritardo regolabile tramite una slitta meccanica collocata lungo il suo percorso dopo il chopper.

Il chopper, di frequenza 620 Hz, permette di bloccare meccanicamente gli impulsi di pump per poter prendere nuovi riferimenti del campione a riposo (fondamentale per monitorare le modifiche indotte dal pump nelle costanti ottiche del Bi-2212 durante la sua fase di rilassamento).

Per rendere collineari gli impulsi di pump e di probe, una lente lungo i rispettivi percorsi li focalizza su un filtro dicroico (D), ovvero un'ottica che consente una trasmissione elevata oltre i 950 nm (e bassa al di sotto di questa soglia), e alta

riflessione al di sotto di tale valore (bassa nel caso opposto). Gli impulsi di pump e probe resi collineari si propagano fino al campione, venendo riflessi da questo su uno specchio e infine su un filtro (FP) a soglia 950 nm. Quest'ultimo è un short pass filter, che taglia il pump e che quindi permette al solo probe di passare per una  $\lambda/2$  e per un polarizzatore (delle ottiche che, selezionando la polarizzazione degli impulsi<sup>1</sup>, filtrano la luce) e di raggiungere il detector.

Il detector è costituito da una coppia di fotodiodi che rilevano pertanto uno l'impulso probe di riferimento e l'altro quello passante attraverso il campione. L'intensità del segnale differenziale risultante viene infine rilevato da un amplificatore lock-in, sincronizzato alla frequenza del chopper (620 Hz), isolando la risposta pump-dependent.

---

<sup>1</sup>Il polarizzatore ha la stessa polarizzazione del fascio incidente, ossia orizzontale; la  $\lambda/2$  ne cambia invece l'orientazione rendendola verticale.

## 5.2.1 Cavità criogenica

Il campione è stato montato in cavità adottando lo stesso schema già sviluppato in laboratorio per studiare le proprietà ottiche di sistemi ibridi luce-materia [3].

Il campione è sigillato tra due membrane di nitruro di silicio spesse  $2\mu m$  e montato su un piatto di rame tra i due specchi della cavità (figura 5.2A). Il movimento di ciascun specchio può essere controllato da tre attuatori piezoelettrici: il movimento indipendente di ciascuno dei tre dispositivi ne garantisce l'allineamento orizzontale e verticale, mentre il movimento simultaneo dei tre ne origina la traslazione rigida. Gli specchi della cavità sono montati su supporti in rame e vengono raffreddati criogenicamente tramite cavi di rame direttamente collegati al dito freddo del criostato. Poiché l'intervallo operativo di temperatura degli attuatori piezoelettrici è compreso tra 283K e 313K, essi sono termicamente isolati dai supporti degli specchi. Il disaccoppiamento termico è realizzato posizionando tra gli attuatori piezoelettrici e i supporti degli specchi un disco in PEEK (su cui gli attuatori agiscono effettivamente) e tre cilindri in ceramica.

Infine, una termocoppia montata sul piatto di rame che supporta il campione permette di misurarne la temperatura. La cavità criogenica così costruita (figura 5.2B) è racchiusa in una camera a vuoto e montata su un criostato, il cui dito freddo è a diretto contatto con il supporto in rame del campione.

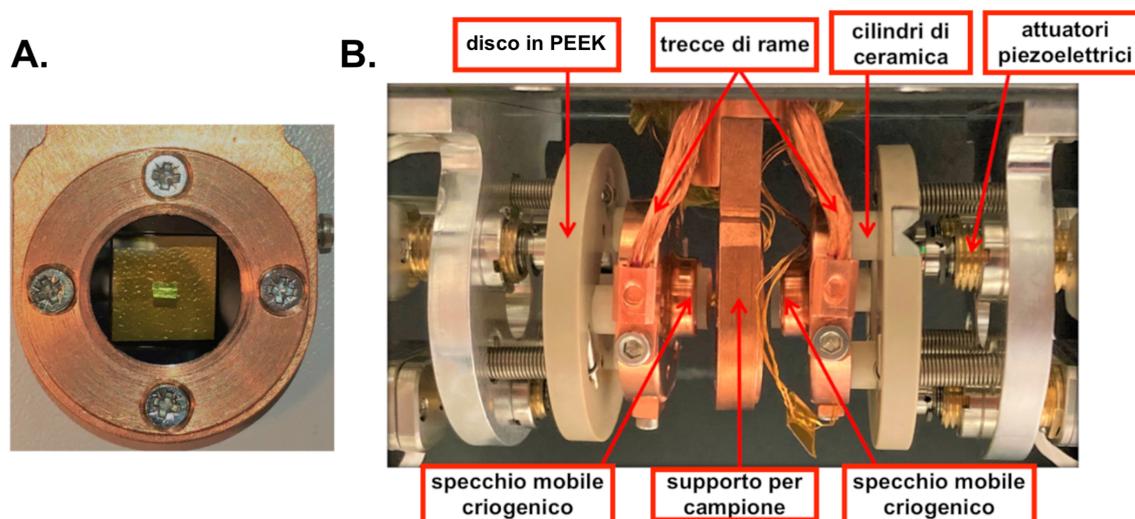


Figura 5.2: **Cavità criogenica.** [3] (A) Il campione è montato tra due sottili membrane di nitruro di silicio. (B) Gli specchi della cavità sono mobili e in contatto termico con il supporto del campione ma isolati dagli attuatori piezoelettrici.

### 5.3 Misure preliminari pump-probe fuori dalla cavità

Il campione analizzato è il Bi-2212 al doping ottimale, la cui temperatura critica è stimata essere  $T_C \approx 91$  K.

In una situazione di equilibrio del campione (ovvero quando il pump è bloccato meccanicamente), la  $\lambda/2$  e il polarizzatore vengono regolati in modo che la differenza di segnale tra il canale di riferimento e quello del campione, rilevati dai due fotodiodi del detector, sia nulla.

Effettuata questa regolazione, è possibile tracciare la variazione della riflettività  $\Delta R$  del campione una volta che la pompa verrà aperta. La variazione  $\Delta R$  è definita come la differenza tra la riflettività con e senza l'attivazione della pompa, e viene misurata in funzione del ritardo temporale tra pump e probe, controllato dalla scansione della slitta meccanica.

Al fine di ottenere una risposta di riferimento del campione e di comprenderne le proprietà ottiche durante la fase di rilassamento, è stata eseguita una prima misura pump-probe senza cavità (ottenuta mediante la rimozione del primo dei due specchi che delimitano la cavità stessa) alla temperatura ambiente  $T=295$ K. La misura è stata poi ripetuta mantenendo invariata la configurazione del setup e raffreddando la camera con elio liquido, fino a ridurre la temperatura della camera criogenica a  $T=20$ K, al di sotto di quella critica  $T_C$ .

Dal confronto delle misure pump-probe condotte alle due diverse temperature (mostrate nella prossima sezione), si intende esaminare il modo in cui cambia la riflettività del campione nello stato normale e in quello superconduttivo.

Infatti, una qualsiasi discontinuità manifestata nella variazione della riflettività del Bi-2212 nei due casi, consentirebbe di estrapolarne la temperatura critica.

## 5.4 Risultati ottenuti

Si riportano di seguito le misure pump-probe alle temperature  $T=295\text{K}$  e  $T=20\text{K}$ , che mostrano l'andamento nel tempo della variazione di riflettività  $\Delta R$  del Bi-2212.

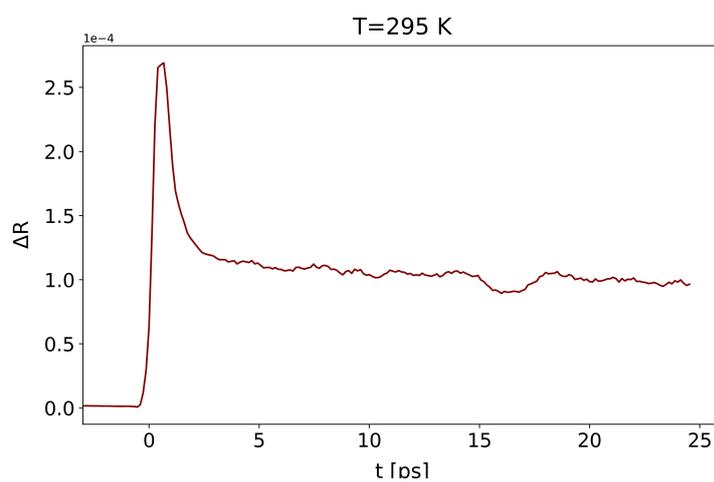


Figura 5.3: Riflettività del Bi-2212 a temperatura ambiente.

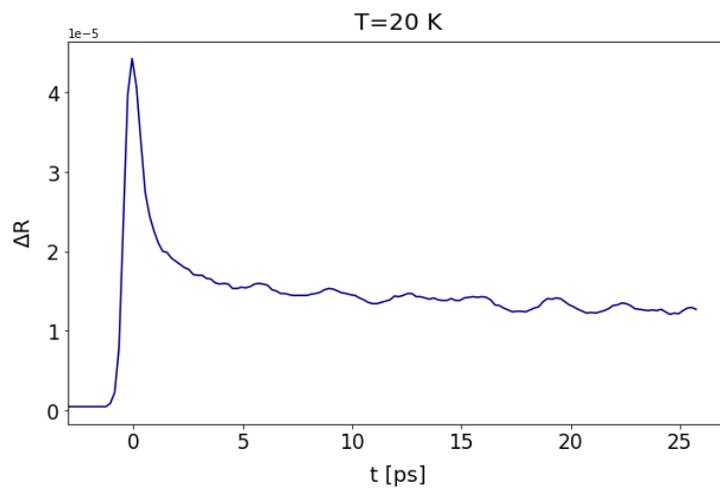


Figura 5.4: Riflettività del Bi-2212 a una temperatura inferiore a  $T_C$ .

Il segnale pump-probe è reso evidente dal picco al cosiddetto "tempo zero", che rappresenta l'istante in cui, oltre alla sovrapposizione spaziale tra i due impulsi (resa possibile dal dicroico), viene raggiunta anche quella temporale (tramite il detuning della slitta meccanica). A tempi negativi, che invece precedono il picco al tempo zero, il segnale è nullo in quanto il campione non è ancora perturbato dal pump e il riferimento e il probe sono bilanciati a zero.

Si nota che a tempi positivi, cioè successivi all'incontro tra i due impulsi, la dinamica del campione durante la fase di rilassamento è simile alle due temperature: non emergono particolari discontinuità nel comportamento del materiale che possano essere indicative della sua transizione alla fase superconduttiva.

La mappa 2D in figura 5.5 permette di seguire l'andamento di  $\Delta R$  in funzione del tempo nell'intervallo di temperature compreso tra 20 e 80 K.

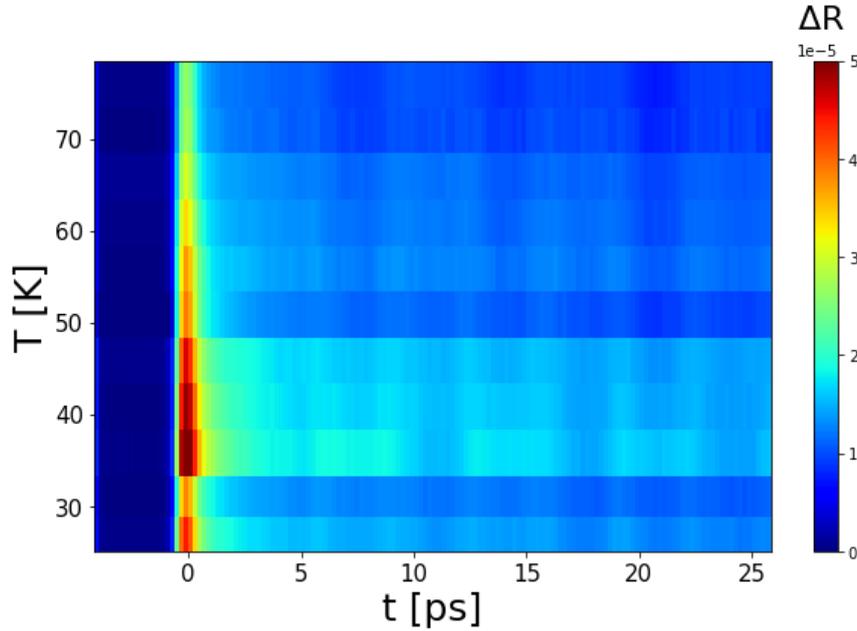


Figura 5.5: **Riflettività del Bi-2212 nell'intervallo di temperature 20-80K.**

Il motivo per cui la mappa copre temperature fino a 80K, senza raggiungere apparentemente quella critica del superconduttore stimata intorno a  $\approx 91\text{K}$ , risiede nel fatto che il Bi-2212 è posizionato tra due sottili membrane di nitrato di silicio (si ricordi 5.2A). La temperatura in corrispondenza del centro di queste membrane è  $\approx 40\text{K}$  più alta rispetto a quella del piatto di rame misurata dalla termocoppia: pertanto la temperatura critica del campione rientra in realtà nell'intervallo di temperature considerato.

La mappa 2D non mostra alcuna discontinuità significativa nel comportamento ottico del superconduttore, suggerendo invece una risposta simile del campione

indipendentemente dalla temperatura.

Potrebbero esserci due motivi per i quali la riflettività non mostra alcun cambiamento al variare della temperatura. È possibile che la lunghezza d'onda del probe, che è stata selezionata a 790 nm, non sia quella ideale per tracciare il cambiamento della riflettività. Le misure dovrebbero essere ripetute con impulsi di sonda aventi un contenuto spettrale maggiore, possibilmente coprendo un range di lunghezze d'onda più ampio.

Inoltre, potrebbero essere state usate potenze di pump e probe troppo elevate (soprattutto di pump), il che ha provocato un incremento locale istantaneo del carico termico sul campione. Questo effetto è amplificato dal fatto di aver racchiuso il campione di Bi-2212 tra due membrane di nitruro di silicio che lo isolano termicamente, impedendogli quindi di dissipare questo carico. Pertanto, una possibile soluzione che potrebbe consentire di osservare una discontinuità nelle due misure sarebbe quella di ridurre ulteriormente il repetition rate del laser e l'energia per impulso dei fasci.

# Conclusioni

Nel presente lavoro di tesi, è stato impiegato il metodo del Transfer Matrix per condurre simulazioni di trasmissione ottica lineare che studiassero la transizione del Bi-2212 allo stato superconduttivo in cavità THz. Si sono così ottenute le risposte spettrali del cuprato nella fase di pseudogap ( $T=95\text{K}$ ) e in quella superconduttiva ( $T=6\text{K}$ ).

Inizialmente, si è verificata l'accuratezza dell'implementazione dell'espressione della conducibilità ottica del Bi-2212 nelle due fasi di interesse, basandosi su dati disponibili in letteratura. Si è quindi potuta studiare la trasmissione THz di diversi spessori di campione, al fine di individuare tra questi il più appropriato per le simulazioni. Si è osservato che la trasmissione nella regione del THz risulta trascurabile tranne che per spessori di campione di pochi nanometri.

Si è mostrato che i cuprati sono caratterizzati da un ricco diagramma di fase che li rende estremamente sensibili alle variazioni delle condizioni ambientali in cui si trovano, motivo per cui si è interessati ad accoppiare il campione di Bi-2212 con la cavità. Affinchè il sistema campione-cavità fosse risonante nella regione del THz, si è sviluppato un protocollo che ha permesso di correggere il detuning della cavità, e con il quale è stato possibile generare mappe 2D della trasmissione del superconduttore in cavità. L'analisi di tali mappe, ottenute con le simulazioni nei due stati del materiale, ha evidenziato la presenza di un modo distintivo nella fase superconduttiva del materiale.

Si è innanzitutto investigata la natura di questo modo attraverso nuove simulazioni di Transfer Matrix, che hanno permesso di seguirne l'andamento per vari spessori di Bi-2212. Si è osservato che, all'aumentare dello spessore del campione, la pendenza del modo aumenta fino a collassare del tutto quando lo spessore è pari a 30 nm. L'origine del cambio di pendenza è stata attribuita al cambio della frequenza di risonanza della cavità, che si verifica quando lo spessore del campione è tale da non permettere più ai fotoni che lo attraversano di percorrere l'intera lunghezza della cavità.

Per verificare questa ipotesi, sono state condotte nuove simulazioni nelle quali il campione è stato spostato all'interno della cavità in posizioni non equidistanti dagli specchi, e i risultati hanno confermato la tesi avanzata.

Pertanto il metodo del Transfer Matrix si è dimostrato efficace per tracciare otticamente la temperatura critica del campione Bi-2212 in quanto, nelle mappe di trasmissione THz ottenute dalle simulazioni, emerge un modo della cavità che contraddistingue la fase superconduttiva. Questo modo distintivo, di cui è stata spiegata la natura, ci permette di capire in quale fase si trovi il Bi-2212 e rappresenta l'osservabile che ci si era proposti di individuare.

Non è stata invece individuata alcuna caratteristica ottica che distinguerebbe la fase superconduttiva da quella di pseudogap nelle misure pump-probe fuori cavità. Dai risultati ottenuti in laboratorio è infatti emerso che la risposta del Bi-2212 durante la fase di rilassamento, dopo essere stato cioè perturbato dal pump, è simile nei due stati del materiale. L'assenza di una discontinuità nel comportamento del campione è stata attribuita a due fattori. È probabile che la lunghezza d'onda del probe (790 nm) non sia quella ottimale per rilevare variazioni nella riflettività del campione in funzione della temperatura. Si dovrebbero quindi ripetere le misure coprendo un range di lunghezze d'onda più ampio.

Inoltre, la potenza della perturbazione apportata al campione potrebbe essere stata troppo elevata, provocando un improvviso aumento del carico termico sul materiale. L'isolamento termico che deriva dalle membrane di nitruro di silicio, tra le quali si è racchiuso il campione nel set-up, contribuisce ad amplificare questo effetto. Una potenziale soluzione per osservare un cambio di riflettività del campione nei due stati, potrebbe quindi consistere nella riduzione del repetition rate del laser e della potenza per impulso dei fasci.

Pertanto, si è ancora alla ricerca di una discontinuità nel comportamento ottico del materiale che possa identificarne la transizione verso lo stato superconduttivo.

# Bibliografia

- [1] F. Schlawin, D. M. Kennes, and M. A. Sentef. *Cavity quantum materials*. 9(1):011312, 02 2022. Applied Physics Reviews.
- [2] Gu Qing and Fainman Yeshaiahu. *Semiconductor Nanolasers*. Cambridge University Press. 2017:65-90.
- [3] Giacomo Jarc, Shahla Yasmin Mathengattil, Francesca Giusti, Maurizio Barnaba, Abhishek Singh, Angela Montanaro, Filippo Glerean, Enrico Maria Rigoni, Simone Dal Zilio, Stephan Winnerl, and Daniele Fausti. *Tunable cryogenic terahertz cavity for strong light–matter coupling in complex materials*. 93(3):033102, 03 2022. Review of Scientific Instruments.
- [4] Jarc Giacomo, Mathengattil Shahla Yasmin, Montanaro Angela, Giusti Francesca, Rigoni Enrico Maria andd Sergo Rudi, Fassioli Francesca, Winnerl Stephan, Dal Zilio Simone, Mihailovic Dragan, Prelovšek Peter, Eckstein Martin, and Fausti Daniel. *Cavity-mediated thermal control of metal-to-insulator transition in 1T-TaS2*. 2023/10/01.
- [5] D. Fausti, R. I. Tobey, N. Dean, S. Kaiser, A. Dienst, M. C. Hoffmann, S. Pyon, T. Takayama, H. Takagi, and A. Cavalleri. *Light-Induced Superconductivity in a Stripe-Ordered Cuprate*. *Science*, 331(6014):189–191, 2011.
- [6] Frank L. Pedrotti, Leno M. Pedrotti, and Leno S. Pedrotti. *Introduction to Optics*. Third edition. Addison-Wesley, 2006. ISBN: 9780131499331.
- [7] Alexey V. Kavokin, Jeremy J. Baumberg, Guillaume Malpuech, and Fabrice P. Laussy. *Microcavities*. Oxford University Press, second edition, 2017.
- [8] Anton Frisk Kockum, Adam Miranowicz, Simone De Liberato, Salvatore Savasta, and Franco Nori. *Ultrastrong coupling between light and matter*. page 2, July 2018.
- [9] Mor M. Roses and Emanuele G. Dalla Torre. *Dicke model*. Sept. 2020. Kaden Hazzard, Rice University. DOI:10.1371/journal.pone.0235197.
- [10] Courtney A. DelPo, Bryan Kudisch, Kyu Hyung Park, Saeed-Uz-Zaman Khan, Francesca Fassioli, Daniele Fausti, Barry P. Rand, and Gregory D. Scholes.

- Polariton Transitions in Femtosecond Transient Absorption Studies of Ultra-strong Light–Molecule Coupling.* The Journal of Physical Chemistry Letters, 11(7):2667–2674, 2020. PMID: 32186878.
- [11] Yuming Huang, Fan Wu, and Li Yu. *Rabi oscillation study of strong coupling in a plasmonic nanocavity.* June 2020. New Journal of Physics. DOI:10.1088/1367-2630/ab9222.
- [12] Giacomo Jarc. *Control of collective phenomena in complex materials through cavity electrostatics.* PhD thesis, Università degli Studi di Trieste, 2021/2022.
- [13] Z.M. Zhang, G. Lefever-Button, and F.R. Powell. *Infrared Refractive Index and Extinction Coefficient of Polyimide Films.* 1998. International Journal of Thermophysics. DOI:https://doi.org/10.1023/A:1022655309574.
- [14] Angela Montanaro. *Non-equilibrium response of quantum materials to resonant low-energy electronic photo-excitations.* PhD thesis, Università degli Studi di Trieste, 2020/2021.
- [15] M. R. Norman, D. Pines, and C. Kallin. *The pseudogap: friend or foe of high  $T_C$ ?* Advances in Physics. 54:8, 715-733. DOI:http://dx.doi.org/10.1080/00018730500459906.
- [16] Sumilan Banerjee, Chandan Dasgupta, Subroto Mukerjee, TV Ramakrishnan, and Kingshuk Sarkar. *High Temperature Superconductivity in the Cuprates: Materials, Phenomena and a Mechanism.* June 2018.
- [17] J. A. Slezak, Jinho Lee, M. Wang, K. McElroy, K. Fujita, B. M. Andersen, P. J. Hirschfeld, H. Eisaki, S. Uchida, and J. C. Davis. *Imaging the impact on cuprate superconductivity of varying the interatomic distances within individual crystal unit cells.* Proceedings of the National Academy of Sciences, 105(9):3203–3208, 2008.
- [18] Robert A. Kaindl, Marc A. Carnahan, Daniel S. Chemla, Seongshik Oh, and James N. Eckstein. *Dynamics of Cooper pair formation in  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ .* Phys. Rev. B, 72:060510, Aug 2005.
- [19] J. Orenstein. *Optical Conductivity and Spatial Inhomogeneity in Cuprate Superconductors,* pages 299–324. Springer New York, New York, NY, 2007.
- [20] C. M. Wilson and D. E. Prober. *Quasiparticle number fluctuations in superconductors.* Phys. Rev. B, 69:094524, Mar 2004.
- [21] Jeno Sölyom. *Fundamentals of the Physics of Solids.* Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 2009. Volume II - Electronic Properties. ISBN:978-3-540-85315-2.
- [22] Mark Fox. *Optical Properties of Solids.* Cambridge University Press, second edition, 2010. ISBN:9780199573370.