

Università Cattolica del Sacro Cuore
Sede di Brescia
Facoltà di Scienze Matematiche, Fisiche e Naturali
Corso di Laurea di Primo Livello in Fisica



MISURE DI RIFLETTIVITÀ RISOLTE
SPETTRALMENTE E TEMPORALMENTE SU
SUPERCONDUTTORI AD ALTA
TEMPERATURA CRITICA IN STATO
NORMALE

Relatore:

Dott. Gabriele Ferrini

Correlatore:

Dott. Claudio Giannetti

Laureando:

Tommaso Sala

mat. 3411139

Anno Accademico 2007/2008

Indice

1	Abstract	2
2	Introduzione ai superconduttori e stato dell'arte	4
2.1	Introduzione	4
2.2	Introduzione teorica	10
2.2.1	Interazione elettrone-elettrone	10
2.2.2	Proprietà ottiche	12
2.2.3	Interazione elettrone-fonone	18
2.3	Il Bi2212	23
3	Apparato sperimentale	30
3.1	Laser al femtosecondo	30
3.2	La tecnica Pump and Probe e il Setup utilizzato	30
3.3	Dispersione del supercontinuo sull'array di fotodiodi	37
3.4	Caratterizzazione dell'impulso	39
4	Risultati sperimentali	43
4.1	Caratterizzazione degli spettri del Bi2212	43
4.2	Misure di linearità	45
4.3	Misura del tempo di rilassamento	49
5	Conclusioni	61

Capitolo 1

Abstract

In questo lavoro di tesi sono state studiate le dinamiche delle proprietà ottiche di un superconduttore ad alta temperatura critica a temperatura ambiente ($T \sim 300 K$), attraverso misure di riflettività risolte in tempo nello spettro del visibile e del vicino infrarosso. In particolare, le misure sono state condotte su un cristallo singolo di $Bi_2Sr_2Ca_1Cu_2O_{8+\delta}$ (Bi2212), la cui temperatura critica di transizione alla fase superconduttiva dipende dal drogaggio δ .

I superconduttori da alta temperatura critica (HTSC) sono tuttora oggetto di numerosi studi sperimentali e teorici sia perchè il meccanismo microscopico all'origine del fenomeno della superconduttività in questi sistemi non è ancora stato chiarito, sia perchè essi presentano forti anomalie delle proprietà elettroniche già nello stato normale ($T \sim 300 K$).

L'obiettivo di questo lavoro è quello di studiare tre cristalli di Bi2212 con diversi drogaggi, analizzando in particolare le dinamiche di rilassamento del sistema in seguito all'eccitazione con impulsi laser ultracorti ($\sim 120 fs$). Le misure sono state effettuate mediante tecniche di spettroscopia ottica risolta in tempo (tecnica pump e probe). L'eccitazione (pump) è causata da impulsi laser infrarossi ($\lambda = 800 nm$) mentre l'analisi (probe) è svolta con un probe supercontinuo (con un range di frequenze che varia da 650 nm a 1050 nm), generato da una fibra ottica non lineare microstrutturata. La risposta del sistema è studiata attraverso la misura della variazione di riflettività per diversi ritardi tra pump e probe.

Il lavoro sperimentale riportato in questa tesi è stato svolto nel seguente ordine. Per prima cosa abbiamo misurato la riflettività R dei campioni in un intervallo di frequenze tra 600 nm e 1100 nm. Successivamente, abbiamo misurato la variazione relativa di riflettività ($\frac{\Delta R}{R}$), dovuta all'interazione con l'impulso di pump, a ritardo fissato e per diverse intensità di eccitazione. Infine, variando il ritardo tra il pump e il probe, abbiamo studiato le dinami-

che di rilassamento del sistema a seguito dell'eccitazione con l'impulso laser ultracorto.

Misurando la dinamica delle proprietà ottiche su un ampio spettro di frequenze è stato possibile ottenere informazioni sulla variazione della funzione dielettrica del sistema e, quindi, su come cambiano le proprietà elettroniche sulla scala dei tempi del ps, a seguito dell'eccitazione con l'impulso ultracorto.

Dai risultati ottenuti emerge che, su tutto lo spettro di frequenze misurato, sono presenti due distinte dinamiche di rilassamento, una veloce (~ 200 fs) e una lenta (~ 1 ps). La prima dinamica può essere attribuita al processo di termalizzazione degli elettroni eccitati dall'impulso con un sottoinsieme dei fononi del sistema, mentre la seconda dinamica è dovuta alla termalizzazione del sottoinsieme di fononi con il bagno termico costituito dal resto dei fononi presenti nel sistema a $T \sim 300$ K. Questi risultati sono di fondamentale importanza nello studio dell'accoppiamento elettrone-elettrone e elettrone-fonone, che sono ritenuti i processi alla base delle anomalie delle proprietà elettroniche e di superconducibilità degli HTSC.

Capitolo 2

Introduzione ai superconduttori e stato dell'arte

2.1 Introduzione

Il fenomeno della superconduttività è stato osservato per la prima volta nel 1911 dal fisico Onnes. Egli notò che al di sotto di una certa temperatura ($4.2\text{ K} = -298.95\text{ °C}$) la resistenza del mercurio (Hg) diventa nulla [2]. Oltre al mercurio molti altri elementi metallici al di sotto di una certa temperatura (detta temperatura critica T_c) diventano superconduttori.

Oltre a questa importante proprietà, nei superconduttori al di sotto della temperatura critica si verifica un altro fenomeno interessante: l'*effetto Meissner*, ovvero il diamagnetismo perfetto di un superconduttore.

Se immergo un superconduttore in un campo magnetico, questo non può penetrare al suo interno perchè si creano delle correnti superficiali che (come in un solenoide) generano un campo magnetico uguale e contrario a quello applicato dall'esterno. Questo fa del superconduttore un materiale diamagnetico perfetto. In realtà il campo magnetico esterno penetra all'interno del materiale con una legge data da $B(x) = B_0 e^{-\frac{x}{\lambda}}$, dove λ è detta lunghezza di penetrazione ed ha tipicamente un valore dell'ordine di $\sim 100\text{ nm}$.

La superconduttività può essere distrutta dall'applicazione di un campo esterno maggiore di un campo critico H_c . La formula empirica che fornisce la dipendenza di H_c dalla temperatura T è stata ricavata da Onnes [2] in seguito ad osservazioni sperimentali:

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

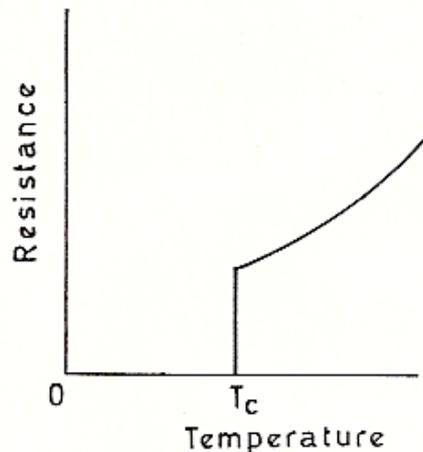


Figura 2.1: Andamento della resistenza in funzione della temperatura in un superconduttore.

Bisogna sottolineare ora che in base al tipo di proprietà magnetiche del materiale distinguiamo i superconduttori in due tipi:

- TIPO I: Sono superconduttori di TIPO I i diamagneti perfetti (per i quali l'effetto Meissner è completo).
- TIPO II: Sono superconduttori di TIPO II quei materiali per i quali, superata una determinata soglia di campo critico H_{c1} , vengono meno le proprietà diamagnetiche pur rimanendo in stato superconduttivo fino ad un secondo campo critico, detto H_{c2} .

Sono superconduttori di TIPO I tutti i metalli mentre sono superconduttori di TIPO II tutti i superconduttori ad alta temperatura critica, dei quali cui la maggior parte sono materiali caratterizzati dalla presenza di piani bi-dimensionali Cu-O, chiamati cuprati (il Bi2212 studiato in questo lavoro appartiene a questa categoria). Approfondiremo questa differenza più avanti.

La teoria che descrive la transizione di fase da metallo a superconduttore viene chiamata BCS [2] (dai nomi di Bardeen, Cooper e Schrieffer). Questa teoria descrive l'instaurarsi della superconduttività come la formazione di uno stato condensato macroscopico di coppie di Cooper. Le coppie di Cooper sono degli stati legati formati da due elettroni aventi spin e momento opposto ed energia prossima all'energia di Fermi, E_F . Il potenziale attrattivo

tra i due elettroni della coppia, che permette la formazione delle coppie di Cooper, è esclusivamente dovuto all'interazione dell'elettrone con il reticolo, cioè, nel formalismo della seconda quantizzazione, all'interazione elettrone-fonone. Per questo motivo, le dinamiche di accoppiamento elettrone-fonone nei metalli superconduttori sono state studiate intensivamente attraverso misure di riflettività risolte in tempo [20]. Il successo della teoria BCS è dovuto anche al fatto che, nei metalli, l'interazione diretta elettrone-elettrone (che può diventare più importante dell'interazione elettrone-fonone) è debole, a causa della delocalizzazione delle funzioni d'onda nel materiale, e può essere trascurata, come dimostrato dalla teoria dei Liquidi di Fermi.

Nel 1986, la scoperta di un materiale ceramico (LaBaCuO) superconduttore a $T_c = 30\text{ K}$ ha aperto l'era dei superconduttori ad alta temperatura critica (HTSC). A questa classe appartengono una grande varietà di materiali ceramici caratterizzati dalla presenza di piani Cu-O. In questi materiali non è tuttora chiaro quale sia il meccanismo microscopico responsabile del potenziale attrattivo necessario per formare le coppie di Cooper. Inoltre, gli HTSC presentano altre due grandi anomalie delle proprietà elettroniche:

- 1) In questi sistemi le interazioni elettrone-elettrone sono talmente forti che, se non drogati, allo stato normale ($T=300\text{ K}$) sono isolanti invece che, come previsto dalla teoria dei Liquidi di Fermi, conduttori.
- 2) Diverse evidenze sperimentali [9] suggeriscono l'apertura di una gap nelle eccitazioni pur non esistendo uno stato condensato macroscopico con le proprietà di superconduzione. Questa fase, detta pseudogap, è particolarmente evidente nei campioni a basso drogaggio e in un range di temperature che va da T_c a $\sim 200\text{ K}$.

Gli HTSC sono oggi molto studiati, soprattutto nelle loro applicazioni. Infatti, avendo una temperatura critica attorno ai 100 K non necessitano del raffreddamento ad elio liquido ma è sufficiente l'azoto liquido ($T \sim 77\text{ K}$). Materiali di questo tipo potrebbero avere un ruolo fondamentale nello sviluppo di magneti superconduttori in grado di lavorare a temperature sempre più elevate.

La transizione di fase superconduttiva negli HTSC è stata studiata negli ultimi vent'anni con diverse tecniche sperimentali tra cui: fotoemissione risolta in angolo [9], spettroscopia ottica e microscopia a scansione a effetto tunnel (STM). Più recentemente, si è compreso che informazioni sul meccanismo che porta alla formazione di questo stato superconduttivo possono essere fornite da misure risolte in tempo, in cui l'impulso di pompa inietta eccitazioni distruggendo le coppie di Cooper (responsabili della superconduzione), mentre l'impulso di probe misura la dinamica di ricombinazione. Studiando il pro-

cesso di distruzione e ricombinazione delle coppie di Cooper è possibile fare chiarezza su alcuni degli aspetti più oscuri di questi materiali come appunto il meccanismo che porta alla formazione delle coppie e la formazione della pseudogap.

Il concetto di *transizione di fase* ha grande importanza nello studio dei superconduttori.

In generale con transizione di fase intendiamo il passaggio di un sistema da una fase ad un'altra con caratteristiche fisiche differenti: abbiamo quindi una discontinuità di una particolare proprietà fisica in funzione di un parametro (in termodinamica in genere tale parametro è la temperatura).

Dal punto di vista termodinamico, si può avere la coesistenza di due fasi diverse quando i due potenziali chimici si equivalgono ad una certa temperatura e pressione: $\mu_1(T, P) = \mu_2(T, P)$.

In base all'ordine della discontinuità durante la transizione di fase, è possibile definire due tipi di transizioni:

Si definiscono **transizioni del primo ordine** quelle in cui si ha una discontinuità nella derivata prima dell'energia libera del mezzo: $\frac{\partial F_1}{\partial T} \neq \frac{\partial F_2}{\partial T}$.

Poichè $S = \frac{\partial F}{\partial T}$, succede che, durante la transizione, si ha una discontinuità nell'entropia, che si manifesta sotto forma di calore latente. In particolare in queste transizioni il sistema passa da una fase con una simmetria ad un'altra con una differente simmetria in modo discontinuo. E' possibile comunque che il sistema si trovi in una situazione particolare in cui le due fasi coesistono, il così detto *stato intermedio*.

Si definiscono **transizioni del secondo ordine** quelle in cui si ha una discontinuità nella derivata seconda dell'energia libera del sistema: $\frac{\partial^2 F_1}{\partial T^2} \neq \frac{\partial^2 F_2}{\partial T^2}$.

Poichè $C_v = -T \frac{\partial^2 F}{\partial T^2}$, si ha che, durante la transizione del secondo ordine, pur non avendo calore latente, si ha una discontinuità nel calore specifico C_v del sistema. In questo caso la variazione di simmetria del sistema avviene in modo continuo (la trattazione della variazione di simmetria durante una trasformazione del secondo ordine è dovuta a Landau). E' sempre possibile stabilire a quale fase appartiene il sistema ma proprio per il fatto che la transizione è continua a $T = T_c$ le due fasi coincidono (non ha senso perciò parlare di coesistenza delle due fasi: esisterà quindi solo un tipo di simmetria).

E' interessante vedere la distinzione tra questi due tipi di transizioni in un superconduttore in funzione dell'applicazione di un campo magnetico esterno.

La transizione dallo stato superconduttivo allo stato normale in assenza di

un campo magnetico esterno avviene alla temperatura critica T_c . In questo caso un superconduttore può esistere solo in una delle due fasi e non abbiamo lo stato intermedio: la transizione è del secondo ordine.

Se applichiamo invece un campo magnetico esterno è possibile avere una coesistenza delle due fasi normale e superconduttiva (stato intermedio). La transizione sarà allora del primo ordine.

Nei superconduttori di TIPO I esiste un campo magnetico critico H_c (tipicamente $5 \text{ mT} < H_c < 200 \text{ mT}$), per il quale si ha coesistenza tra le fasi normale e superconduttrice. Al di sopra di questo campo il campo magnetico penetra completamente nel materiale e il sistema si trova interamente in stato normale (figura 2.2).

L'energia del campo magnetico in corrispondenza di H_c è equivalente al-

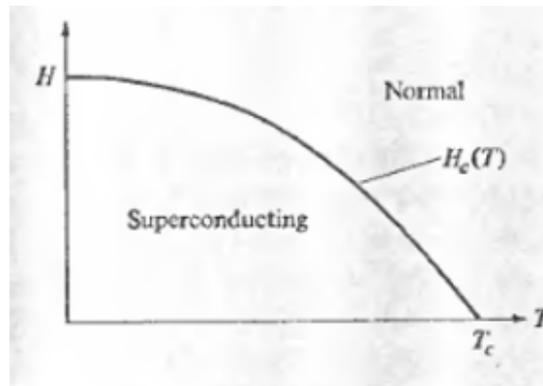


Figura 2.2: Diagramma delle fasi nel piano (H,T) per un superconduttore di TIPO I.

la differenza in energia libera tra lo stato superconduttivo (F_s) e lo stato normale (F_n):

$$F_s(T = 0, H = 0) - F_n(T = 0, H = H_c) = -\frac{\mu_0 H_c^2}{2}.$$

Nei superconduttori di TIPO II (e tra questi anche i nostri campioni in esame) invece la situazione è diversa. Il diamagnetismo perfetto si perde ad un primo campo critico esterno H_{c1} mentre l'annullamento della resistenza elettrica si ha in corrispondenza di un campo critico esterno molto maggiore H_{c2} . In particolare quando $H_{c1} < H < H_{c2}$ il campo magnetico penetra parzialmente nel materiale superconduttore formando tubi di flusso del campo magnetico quantizzati (vortici) [2].

In questo caso viene a formarsi uno stato misto, in cui sulla superficie del materiale saranno presenti zone normali (in corrispondenza dei vortici) e zone superconduttive.

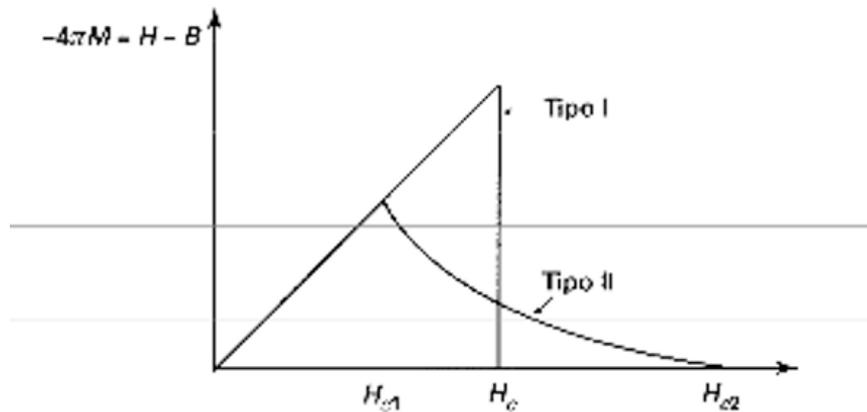


Figura 2.3: Diverso comportamento di un superconduttore TIPO I e TIPO II. In ascissa è riportata la magnetizzazione, in ordinata il campo esterno. Nei superconduttori di TIPO I il diamagnetismo perfetto e la superconduttività cessano bruscamente al campo H_c . Nei secondi l'espulsione del flusso non è più completa a partire dal campo H_{c1} ma la superconduttività permane fino a H_{c2} .

E' possibile, inoltre, indurre una transizione di fase otticamente. In particolare, è stato osservato che, eccitando un campione superconduttore con impulsi di luce laser (nel caso in cui gli effetti del riscaldamento ad opera del laser siano trascurabili), è possibile indurre una transizione dallo stato superconduttore allo stato normale quando il numero delle eccitazioni create dall'impulso di luce supera una soglia. Questo effetto è stato osservato in superconduttori metallici BCS, ma senza la risoluzione temporale necessaria per seguire la dinamica della transizione di fase. Più recentemente, è stata osservata una transizione di fase dallo stato superconduttivo allo stato normale, al di sopra di una fluensa critica di pompa di circa $70 \frac{\mu J}{cm^2}$ in un HTSC (Bi2212 leggermente sottodrogato) [4].

2.2 Introduzione teorica

2.2.1 Interazione elettrone-elettrone

Teoria dei liquidi di Fermi

Lo studio dello stato normale ($T \sim 300 K$) dei superconduttori ad alta temperatura critica (HTSC) è di grande interesse e presenta problematiche tuttora non risolte. Mentre lo stato normale di un superconduttore BCS è ben descritto come un insieme di elettroni debolmente interagenti, (teoria dei liquidi di Fermi), negli HTSC la forte repulsione coulombiana tra gli elettroni ha un ruolo determinante per le proprietà elettroniche. Prima di dare un breve accenno ai modelli sviluppati per descrivere le proprietà in stato normale degli HTSC, in questa sezione daremo una breve descrizione della *teoria dei liquidi di Fermi*.

Un liquido di Fermi a $T=0$ è un gas di elettroni debolmente interagenti in cui vengono riempiti tutti i livelli energetici fino all'ultimo livello disponibile, in corrispondenza del momento di Fermi k_F (a cui corrisponde l'energia di Fermi $E_F = \frac{\hbar^2 k_F^2}{2m_e}$). Nello spazio dei momenti abbiamo quella che viene definita sfera di Fermi, al di fuori della quale non è riempito nessun livello. Prendiamo un primo elettrone di momento \vec{q} con energia superiore a E_F che interagisce con un secondo elettrone di momento \vec{k} nella sfera di Fermi. Durante questo processo devono essere conservati sia i momenti che l'energia totale, secondo le relazioni:

$$\begin{aligned}\vec{k} + \vec{q} &= \vec{k}' + \vec{q}' \\ E_{\vec{k}} + E_{\vec{q}} &= E_{\vec{k}'} + E_{\vec{q}'}\end{aligned}$$

Durante questo processo di scattering i due elettroni si scambieranno energia e momento: il primo elettrone decade in energia e si avvicina al livello di Fermi, mentre il secondo elettrone acquista energia e momento. Questo processo di scambio continua finchè il sistema di elettroni non termalizza; è interessante allora calcolare il tempo di rilassamento del sistema fuori equilibrio a seguito del processo di scattering appena descritto.

La regola d'oro di Fermi permette di calcolare il decay rate $\gamma_{\vec{k}}$ (il lifetime τ è dato da $\tau = \frac{1}{\gamma}$) di un elettrone di momento \vec{k} :

$$\gamma_{\vec{k}} = \frac{2\pi}{\hbar} \sum_{k,q,q'} |U(k-k', q-q')|^2 \rho_{\vec{k}} \quad (2.1)$$

dove $U(k-k', q-q')$ indica il generico elemento di matrice di interazione coulombiana tra due elettroni aventi momenti iniziali \vec{k} e \vec{q} . La densità

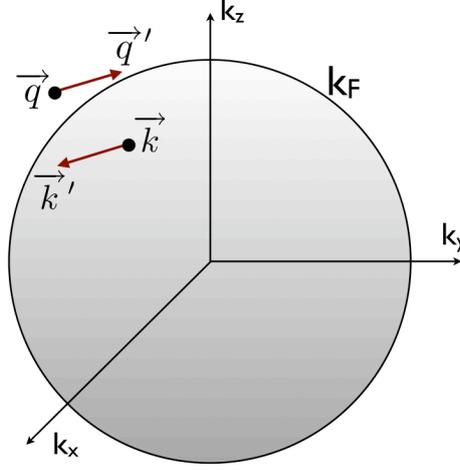


Figura 2.4: Sfera di Fermi.

degli stati finali $\rho_{\vec{k}} = (1 - n_{\vec{k}'})(1 - n_{\vec{q}'})n_{\vec{q}}$ è calcolata tenendo conto del fatto che gli stati finali degli elettroni con momenti \vec{k} e \vec{q} devono essere vuoti (fattori $(1 - n_{\vec{k}'})$ e $(1 - n_{\vec{q}'})$). Infine, per calcolare la probabilità totale di decadimento dobbiamo sommare su tutti gli stati pieni con $\vec{q} < \vec{k}_F$ (fattore $n_{\vec{q}}$).

Sviluppando il calcolo si ottiene:

$$\gamma = \frac{1}{\tau} = \frac{\alpha(\hbar\omega - E_F)^2}{E_F} + \frac{\beta(k_B T)^2}{E_F} \quad (2.2)$$

dove $\frac{\beta(k_B T)^2}{E_F}$ rappresenta la correzione che tiene conto della temperatura finita del sistema.

Possiamo dunque affermare che lo scattering elettrone-elettrone avviene in una piccola porzione dello spazio delle fasi attorno ad E_F , ovvero nella crosta sferica $E - E_F$. La probabilità di scattering non è quindi legata all'intensità dell'interazione elettrone-elettrone ($|U(k - k', q - q')|^2$), ma allo spazio delle fasi disponibile. Quando $E \rightarrow E_F$, $\gamma \rightarrow 0$ e il tempo medio di scattering diventa infinito. Poichè nella teoria BCS il condensato superconduttore è formato solo dagli elettroni con $E - E_F < \hbar\omega_D$ ($\hbar\omega_D \sim 20 - 40$ meV è la frequenza di Debye), lo scattering elettrone-elettrone (el-el) può essere trascurato. Al contrario dei superconduttori metallici, lo stato normale degli HTSC non può essere descritto dalla teoria dei liquidi di Fermi e lo scattering

el-el deve essere incluso in un modello che spieghi la superconduttività ad alta temperatura.

2.2.2 Proprietà ottiche

L'interazione di una radiazione elettromagnetica con frequenza ω con un mezzo può essere descritta attraverso la *funzione dielettrica*. Ricordo prima di tutto la definizione di funzione dielettrica:

$$\epsilon(\omega) = \epsilon_1(\omega) + i\epsilon_2(\omega) = \epsilon_1(\omega) + i\frac{4\pi\sigma_1(\omega)}{\omega}$$

dove $\epsilon_1(\omega)$ (parte reale) è legata alla dispersione del materiale mentre $\epsilon_2(\omega)$ (parte immaginaria) è legata all'assorbimento. $\sigma_1(\omega)$ rappresenta la parte reale della conducibilità ottica del mezzo ($\sigma(\omega) = \sigma_1(\omega) + i\sigma_2(\omega)$) ed è legata alla parte immaginaria della funzione dielettrica dalla relazione $\sigma_1(\omega) = \frac{\epsilon_2(\omega)\omega}{4\pi}$.

La funzione dielettrica è legata all'indice di rifrazione e quindi alla dispersione e all'assorbimento dalla relazione:

$$n^2(\omega) = \epsilon(\omega)$$

Il modello più semplice per la funzione dielettrica di un sistema è il modello di Drude-Lorentz, in cui il sistema è modellizzato come un insieme di N elettroni in parte liberi e in parte oscillanti soggetti ad una forza di richiamo K e ad uno smorzamento γ .

Per ricavare la funzione dielettrica di un sistema di N oscillatori armonici, partiamo dalle equazioni di Maxwell per un mezzo senza cariche libere ($\rho = 0$), non magnetico ($\mathbf{B} = \mu_0\mathbf{H}$) e lineare ($\mathbf{D}(\omega) = \epsilon(\omega)\mathbf{E}(\omega)$).

$$\begin{aligned}\nabla \times \mathbf{D} &= \epsilon \nabla \times \mathbf{E} = 0 \\ \nabla \times \mathbf{E} &= -\mu_0 \frac{\partial \mathbf{H}}{\partial t} \\ \nabla \times \mathbf{H} &= \epsilon_0 \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} + \frac{\partial \mathbf{P}}{\partial t} + \mathbf{J} \\ \nabla \times \mathbf{B} &= 0\end{aligned}$$

Dal rotore della prima equazione ottengo l'equazione per un'onda elettromagnetica in un materiale:

$$\nabla \times \nabla \times \mathbf{E} = -\frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} - \mu_0 \frac{\partial^2 \mathbf{P}}{\partial t^2} - \mu_0 \frac{\partial \mathbf{J}}{\partial t} \quad (2.3)$$

Dove \mathbf{P} rappresenta la polarizzazione e \mathbf{J} la densità di corrente del mezzo. I termini a destra sono detti sorgenti.

Dal punto di vista microscopico, l'equazione che rappresenta il moto oscillante dell'elettrone è:

$$m \frac{d^2 \mathbf{r}}{dt^2} + m\gamma \frac{d\mathbf{r}}{dt} + K\mathbf{r} = -e\mathbf{E} \quad (2.4)$$

ovvero l'equazione di un elettrone oscillante soggetto ad una forza elastica di richiamo $F_{ric} = e\mathbf{E} = -K\mathbf{r}$, dove γ è la costante di smorzamento. Nel caso di un campo esterno oscillante (la cui dipendenza temporale è la stessa degli elettroni oscillanti) l'equazione 2.4 diventa:

$$(-m\omega^2 - im\gamma\omega + \mathbf{K})\mathbf{r} = -e\mathbf{E}$$

Posso allora scrivere la polarizzazione (definita come il momento di dipolo per unità di volume) come:

$$\mathbf{P} = -Ner = \frac{Ne^2}{\mathbf{K}} \mathbf{E} = \frac{Ne^2}{-m\omega^2 - im\gamma\omega + \mathbf{K}} \mathbf{E}$$

Inserendo \mathbf{P} nell'equazione 2.3, nel caso di un materiale isolante ($\mathbf{J}=0$), si ottiene:

$$\nabla^2 \mathbf{E} = \frac{1}{c^2} \left(1 + \frac{Ne^2}{m\epsilon_0} \cdot \frac{1}{\omega_0^2 - \omega^2 - i\gamma\omega} \right) \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2}$$

Dove $\omega_0 = \sqrt{\frac{K}{m}}$ è la frequenza di risonanza del sistema. Voglio ora cercare soluzioni della forma: $\mathbf{E} = E_0 e^{i(\kappa z - \omega t)}$, un'onda armonica piana e omogenea. La sostituzione diretta fornisce:

$$\kappa^2 = \frac{\omega^2}{c^2} n^2 = \frac{\omega^2}{c^2} \left(1 + \frac{Ne^2}{m\epsilon_0} \cdot \frac{1}{\omega_0^2 - \omega^2 - i\gamma\omega} \right) \quad (2.5)$$

Il vettore d'onda κ è di conseguenza un vettore complesso: $\kappa = \mathbf{k} + i\alpha$. Anche l'indice di rifrazione n è complesso dal momento che $\kappa = \frac{\omega}{c} n$.

L'equazione di un'onda propagante lungo la direzione z è:

$$\mathbf{E} = E_0 e^{-\alpha z} e^{i(\kappa z - \omega t)}$$

La soluzione presenta una parte oscillante ($e^{i(\kappa z - \omega t)}$) e una smorzata ($e^{-\alpha z}$) dove α è il coefficiente di assorbimento che mostra come l'energia di un'onda elettromagnetica venga assorbita da un mezzo non trasparente durante la propagazione.

Ricordando che $\epsilon(\omega) = n^2(\omega)$, dall'equazione 2.5 ricaviamo la funzione dielettrica di Lorentz ϵ_L :

$$\epsilon_L = 1 + \left(\frac{Ne^2}{m\epsilon_0} \right) \left(\frac{1}{\omega_0^2 - \omega^2 - i\gamma\omega} \right)$$

Nel caso di un metallo, la funzione dielettrica è ottenuta dal modello di Drude, che tiene conto del fatto che $\mathbf{P} = 0$ e $\mathbf{J} = \sigma\mathbf{E}$. In questo caso $\gamma = \frac{1}{\tau_D}$ rappresenta il tempo di rilassamento a seguito dell'urto tra due elettroni, ottenuto dal modello dei liquidi di Fermi, descritto nel paragrafo 2.2.1. In questo modello si parte dall'equazione del moto:

$$\frac{d\mathbf{J}}{dt} + \gamma\mathbf{J} = -e\mathbf{E}$$

I calcoli sono simili a quelli del caso di elettroni legati e il risultato fornisce la funzione dielettrica di Drude ϵ_D :

$$\epsilon_D = 1 - \left(\frac{Ne^2\tau^2}{m\epsilon_0} \right) \left(\frac{1}{\omega\tau} \right) \left(\frac{1}{1 + i\omega\tau} \right)$$

Nel caso più generale la funzione dielettrica di un materiale viene modellizzata con il modello di Drude-Lorentz [16]:

$$4\pi\sigma(\omega) = \frac{\omega_{pD}^2\tau_D}{1 - i\omega\tau_D} + \sum_j \frac{\omega_{pj}^2\omega}{i(\omega_j^2 - \omega^2) + \frac{\omega}{\tau_i}} \quad (2.6)$$

Il primo termine nella formula 2.6 rappresenta quindi la risposta alla Drude degli elettroni, dove i portatori di carica possono essere considerati liberi e non è necessario inserire un termine di oscillazione smorzata. Questo modello si adatta bene ai metalli, dove gli elettroni si muovono indisturbati formando una nube elettronica, un plasma caratterizzato da una propria frequenza di oscillazione $\omega_{pD}^2 = \frac{ne^2}{\epsilon_0 m^*}$, dove n è la densità elettronica e m^* la massa efficace degli elettroni che tiene conto delle interazioni. Il contributo della loro interazione alla conducibilità ottica (e quindi all'indice di rifrazione) può essere visto come una lorentziana centrata a frequenza zero la cui larghezza è data dal parametro di scattering $\gamma = \frac{1}{\tau_D}$, cioè $\epsilon_D = \epsilon_L(\omega_0 = 0)$.

In figura 2.5 vengono riportate la parte reale e immaginaria dell'indice di rifrazione di un metallo. Si noti che non vi è soglia di assorbimento e che, a basse frequenze, la lunghezza di penetrazione nel sistema tende a zero. Il modello di Drude è di grande utilità per descrivere le proprietà ottiche di metalli e di sistemi in cui il processo di assorbimento avviene attraverso transizioni

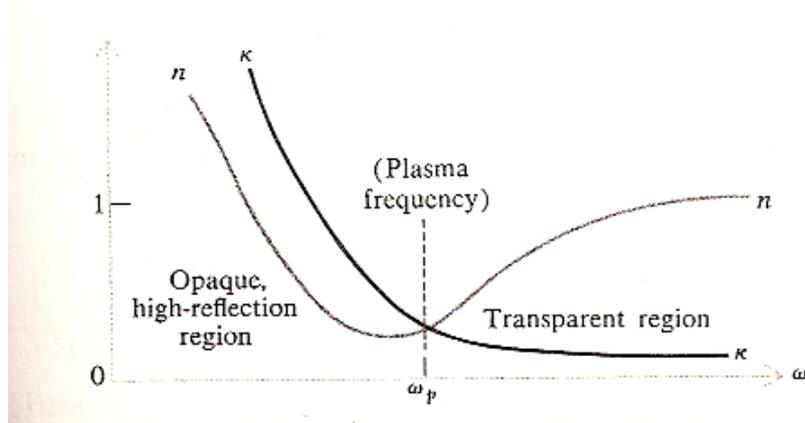


Figura 2.5: Parte reale e parte immaginaria dell'indice di rifrazione nel modello di Drude per un metallo [12].

intra-band.

Il secondo termine nella formula 2.6 riguarda elettroni legati, i quali sono visti come un sistema di oscillatori classici ad una propria frequenza ω_j . I termini ω_{pj} e $\frac{1}{\tau_j}$ sono rispettivamente la frequenza di plasma e gli scattering rate propri dei singoli oscillatori.

Possiamo ricavare separatamente l'indice di rifrazione reale e l'indice di rifrazione immaginario per il j-esimo oscillatore [6]:

$$\begin{aligned}\epsilon_{1j}(\omega) &= 1 + \frac{4\pi e^2 N}{m} \frac{\omega_j^2 - \omega^2}{(\omega_j^2 - \omega^2)^2 + \omega^2 \gamma^2} \\ \epsilon_{2j}(\omega) &= \frac{4\pi e^2 N}{m} \frac{\omega \gamma}{(\omega_j^2 - \omega^2)^2 + \omega^2 \gamma^2}\end{aligned}$$

Particolarmente interessante è l'assorbimento, dove notiamo un massimo quando $\omega = \omega_j$ (picco di risonanza). Abbiamo quindi un picco nell'assorbimento del materiale che corrisponde ad una transizione interbanda. La larghezza di questa lorentziana è determinata dalla costante di scattering elettrone-elettrone $\gamma_i = \frac{1}{\tau_i}$, il quale può essere visto come il parametro che fornisce una stima del tempo di vita dell'elettrone eccitato a seguito dell'assorbimento.

Nei casi reali noi dobbiamo tenere conto di entrambi i termini, che descrivono il comportamento sia degli elettroni di conduzione, che di quelli di valenza. Infatti in un materiale a basse energie di radiazione incidente vengono indotte solo transizioni intra-band ben descritte dal modello alla Drude

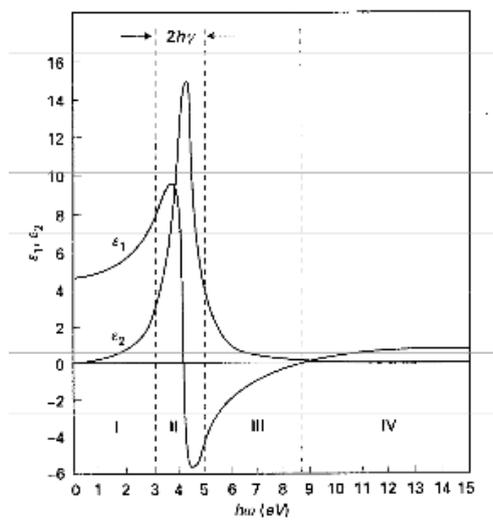


Figura 2.6: Parte reale e parte immaginaria della funzione dielettrica nel modello Drude-Lorentz [6].

visto per i metalli. Ad energie superiori si innescano transizioni interbanda ben descritte da un modello alla Lorentz. Per transizioni che coinvolgono l'energia di Fermi il τ varia con la frequenza secondo la (2.2).

Nei superconduttori ad alta temperatura critica le proprietà ottiche non possono essere descritte da un semplice modello di Drude.

Questi materiali sono caratterizzati da interazioni elettroniche talmente forti che nello stato normale, con drogaggio nullo ($\delta = 0$), sono isolanti, nonostante la banda di conduzione sia semipiena. La causa di questa anomalia è che l'interazione coulombiana U tra due elettroni è maggiore della larghezza W della banda; tutto questo fa sì che la banda di conduzione si divida in due sottobande (bande di Hubbard, figura 2.7), una completamente piena e l'altra completamente vuota, causando il comportamento isolante appena descritto [9]. Per rendere il materiale conduttore è necessario drogare il sistema iniettando delle buche nella banda di conduzione. Nel caso del $Bi_2Sr_2Ca_1Cu_2O_{8+\delta}$ questo effetto si ottiene variando la stechiometria δ degli atomi di ossigeno.

In questi sistemi, a causa della forte interazione tra gli elettroni, il tempo di decadimento elettronico τ dipende in maniera complessa da ω [15]. La conducibilità assume allora questa forma:

$$4\pi\sigma(\omega) = \frac{\omega_p^2 \tau^*(\omega, T)}{1 - i\omega\tau^*(\omega, T)}$$

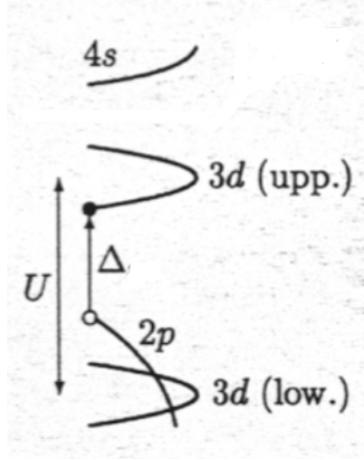


Figura 2.7: Divisione in sottbande di Hubbard. Δ rappresenta l'eccitazione minima con rimozione di un elettrone dalla banda 2p dell'ossigeno verso la banda di Hubbard vuota.

dove $\frac{1}{\tau^*(\omega, T)} = \frac{1}{\tau(\omega, T)} - i\omega\lambda(\omega, T)$. Di conseguenza:

$$4\pi\sigma(\omega) = \frac{\omega_p^2}{\frac{1}{\tau(\omega, T)} - i\omega[1 + \lambda(\omega, T)]}$$

in cui il termine $1 + \lambda(\omega, T)$ rappresenta l'aumento della massa elettronica dovuta alle interazioni elettrone-elettrone che avvengono [16], ovvero la massa efficace dell'elettrone rapportata alla massa della banda. Questo modello prende il nome di *marginal Fermi-liquid* e viene comunemente utilizzato per descrivere le proprietà ottiche degli HTSC [12].

Un caso molto interessante è quello dell' $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ in stato normale, su cui è stata effettuata una misura di riflettività risolta in tempo in un ampio range spettrale [8]. I risultati indicano che, in prossimità dell'energia di Fermi, l'andamento di γ è descritto da una parabola come vuole la (2.2). A energie poco superiori invece abbiamo un andamento differente da quello previsto dalla teoria dei liquidi di Fermi, in particolare come mostra la figura 2.8 si ha un andamento a cuspid.

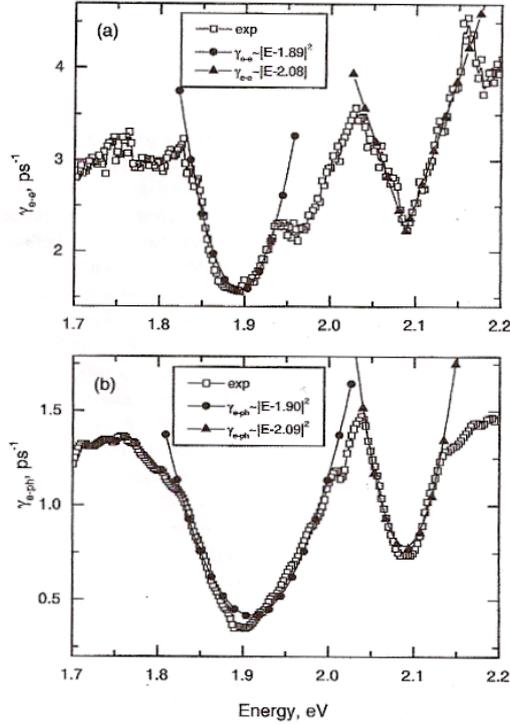


Figura 2.8: Andamento del coefficiente elettrone-elettrone e del coefficiente elettrone-fonone in prossimità dell'energia di Fermi nell'YBCO [8].

2.2.3 Interazione elettrone-fonone

Oltre allo scattering elettrone-elettrone dobbiamo considerare anche lo scattering elettrone-fonone.

Con il termine fonone indichiamo un quanto di un modo normale di vibrazione di un reticolo cristallino. I fononi giocano un ruolo importante nella comprensione di molte proprietà dei solidi, quali il calore specifico e la conduzione termica. Fenomeni classici come il trasporto di calore e energia all'interno di un solido possono essere ricondotti all'interazione microscopica tra fononi o tra elettroni e fononi.

Il processo di interazione elettrone-fonone può essere considerato come un elettrone di energia $\hbar\omega_k$ che assorbe (o emette) un fonone di energia $\hbar\Omega_p$ secondo la legge di conservazione dell'energia: $\hbar\omega_{k'} = \hbar\omega_k \pm \hbar\Omega_p$.

Gli elettroni cedono energia ai fononi e viceversa in un processo di scattering governato da un decay rate γ_{el-ph} che viene calcolato in un modo simile a γ_{el} . In questo caso nel calcolo di γ_{el-ph} attraverso la regola d'oro di Fermi (equazione 2.1) bisogna tener conto sia dell'elemento di matrice dell'intera-

zione elettrone-fonone che della densità degli stati fononici $F(\Omega)$. Si può dimostrare [9] che, in prossimità dell'energia di Fermi, vale la relazione:

$$\gamma_{el-ph} \sim (\hbar\omega - E_F)^2 \quad (2.7)$$

che è un risultato simile a quello per lo scattering elettrone-elettrone. La comprensione dei meccanismi di interazione elettrone-fonone è di fondamentale importanza nello studio della superconduttività. Nei superconduttori metallici, infatti, è proprio l'interazione elettrone-fonone che permette la formazione delle coppie di Cooper. Tipicamente, l'effetto dell'interazione el-ph è quello di perturbare la relazione di dispersione degli elettroni vicino all'energia di Fermi. In particolare, questo si traduce in una variazione della velocità degli elettroni con momento \vec{k} e $E \sim E_F$, data dalla relazione:

$$v'(\vec{k}) = \left(\frac{1}{1 + \lambda} \right) v(\vec{k})$$

dove λ è la costante di accoppiamento elettrone-fonone.

La conoscenza della costante λ in un particolare sistema è fondamentale per capire il ruolo dell'accoppiamento el-ph.

Tra le varie tecniche sperimentali, le misure di riflettività risolte in tempo si sono rivelate uno strumento importantissimo per misurare λ in metalli e HTSC [10], [11]. Si deve tenere conto, però, che in questo tipo di misure la quantità direttamente accessibile sperimentalmente non è λ ma $\lambda\langle\Omega^2\rangle$, dove $\langle\Omega^2\rangle$ rappresenta il momento secondo della distribuzione delle frequenze dello spettro fononico. Questa quantità è legata alla densità di stati fononici $F(\Omega)$ tramite un integrale su tutto lo spettro dell'energia dei fononi [10], [8]:

$$\lambda\langle\Omega^2\rangle = 2 \int d\Omega \alpha^2(\Omega)F(\Omega)\Omega$$

dove $\alpha^2(\Omega)$ è una costante di accoppiamento che lega la densità spettrale dei fononi agli elettroni tramite la funzione $\alpha^2(\Omega)F(\Omega)$ (funzione di Eliashberg).

Il Modello a due temperature

Il *modello a due temperature* descrive il comportamento di un metallo che è stato portato fuori equilibrio (ad esempio tramite un'eccitazione di tipo ottico).

L'idea di fondo è che l'effetto dell'assorbimento dell'impulso di pompa sia quello di scaldare impulsivamente il gas di elettroni fino ad una temperatura maggiore di quella del reticolo cristallino ($T_{el} \gg T_{latt}$, dal momento

che $C_{el} \ll C_{latt}$) e che tale energia venga poi fornita al reticolo attraverso lo scattering elettrone-fonone, su una scala di tempo dell'ordine di qualche picosecondo. Il rilassamento termina quando il sistema di elettroni ha raggiunto una temperatura pari a quella del reticolo, che ora sarà maggiore di quella iniziale.

Affinchè questo modello sia valido, dobbiamo assumere che il sistema composto dagli elettroni raggiunga rapidamente uno stato di equilibrio interno prima che il calore venga ceduto al reticolo (termalizzazione immediata degli elettroni). Questa assunzione risulta valida nei metalli, in quanto, tipicamente, per $E \sim 1.5$ eV si ha che $\tau_{el-el} \sim 1 - 10$ fs (formula 2.2), cioè la termalizzazione impulsiva tra gli elettroni avviene su scale di tempo minori della durata dell'impulso.

Il sistema può essere visto come l'insieme di due sistemi termodinamici interagenti a diverse temperature: uno costituito dal reticolo e l'altro dagli elettroni.

L'andamento temporale di T_{el} e T_{latt} può essere descritto da questo sistema di equazioni differenziali accoppiate:

$$\begin{aligned} C_{el}(T_{el}) \frac{dT_{el}}{dt} &= I_{ext} - g \cdot (T_{el} - T_{latt}) \\ C_{latt}(T_{latt}) \frac{dT_{latt}}{dt} &= g \cdot (T_{el} - T_{latt}) \end{aligned}$$

dove $C_{el} = \gamma_{el} T_{el}$ e C_{latt} sono rispettivamente i calori specifici del gas di elettroni e del reticolo cristallino, mentre I_{ext} è il profilo temporale gaussiano dell'intensità di pompa; $g = \gamma_{el-ph} C_{el} = \gamma_{el-ph} \gamma_{el} T_{el}$ è la costante di accoppiamento tra il sistema di elettroni e il sistema di fononi legata alla costante di accoppiamento elettrone-fonone λ , come mostrato da Philip Allen nel 1987 [10]. In particolare vale:

$$\gamma_{el-ph} = \frac{3\hbar\lambda\langle\Omega^2\rangle}{\pi k_B T_{el}}$$

dove $\lambda\langle\Omega^2\rangle$ è la quantità legata all'accoppiamento el-ph, discusso all'inizio di questa sezione, e \hbar è la costante di Plank.

Quindi il rilassamento della temperatura elettronica può essere messo in relazione con $\lambda\langle\Omega^2\rangle$ in questo modo:

$$T_{el} \frac{dT_{el}}{dt} = - \frac{3\hbar\lambda\langle\Omega^2\rangle}{\pi k_B} \cdot (T_{el} - T_{latt})$$

La relazione per la costante di accoppiamento g è allora la seguente:

$$g = \frac{3\hbar\gamma_{el}\lambda\langle\Omega^2\rangle}{\pi k_B}$$

Posso disaccoppiare il sistema di equazioni derivando ulteriormente e ottenere l'equazione differenziale del secondo ordine:

$$T_{el} \frac{d^2 T_{el}}{dt^2} + \left(\frac{dT_{el}}{dt} \right)^2 + \frac{3\hbar\lambda\langle\Omega^2\rangle}{\pi k_B} \left(1 + \frac{\gamma_{el} T_{el}}{C_{latt}} \right) \frac{dT_{el}}{dt} = 0$$

(per semplificare si è eliminato I_{ext} , cioè si è considerato solo il processo di rilassamento). Questa equazione può essere risolta numericamente inserendo il valore delle costanti fisiche e le condizioni al contorno $T_{el}(0)$ e $T_{el}(\infty) = T_{latt}(\infty)$ che è possibile stimare conoscendo il valore del calore specifico del sistema e l'energia totale assorbita.

Risolvendo l'equazione è possibile ottenere l'evoluzione della temperatura elettronica T_{el} e in particolare il tempo di rilassamento. Dal risultato della soluzione numerica di questa equazione si ha che la dinamica di rilassamento della temperatura elettronica può essere approssimata con una funzione esponenziale con un tempo di decadimento τ dato da:

$$\tau = \frac{\pi k_B T_{el}}{3\hbar\lambda\langle\Omega^2\rangle}$$

Quindi la stima di τ attraverso una misura di riflettività risolta in tempo permette di ottenere informazioni sull'accoppiamento elettrone fonone attraverso il termine $\lambda\langle\Omega^2\rangle$ [10], [11].

Variatione di temperatura e riflettività

Il modello a due temperature assume che la variazione di riflettività misurata in un esperimento pump-probe sia proporzionale alla variazione della temperatura elettronica T_{el} [11]. In questa sezione descriveremo brevemente i motivi per cui questa assunzione risulta valida.

L'effetto della pompa è quello di scaldare il gas di elettroni e quindi causare una modifica della distribuzione degli elettroni. In particolare, assumendo la termalizzazione tra gli elettroni, la temperatura efficace del sistema varia e quindi vengono aperti stati disponibili sotto l'energia di Fermi con una contemporanea occupazione di stati sopra l'energia di Fermi, come mostrato in figura 2.9.

L'impulso di pompa causa di conseguenza una modifica dell'assorbimento del materiale.

L'impulso di probe eccita delle transizioni verso gli stati vuoti e quindi misura una modifica nell'assorbimento. Tutto questo porta di conseguenza ad una variazione della riflettività rispetto alla condizione di equilibrio.

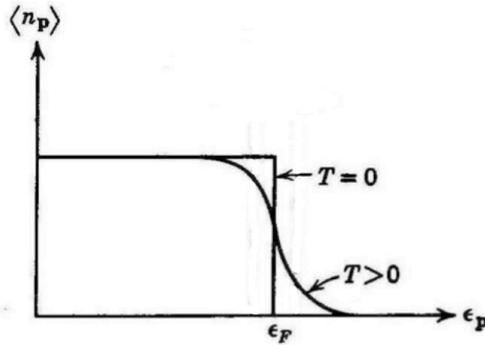


Figura 2.9: Variazione della funzione di distribuzione degli elettroni con l'aumento della temperatura. Qui viene presentato il caso fondamentale $T=0$ in cui sotto E_F tutti gli stati sono pieni e sopra vuoti.

La variazione della riflettività può dipendere anche dalla variazione della temperatura del reticolo cristallino, infatti una variazione di quest'ultima causa una variazione dell'indice di rifrazione. Possiamo allora scrivere:

$$\Delta R = a\Delta T_{el} + b\Delta T_{latt}$$

Bisogna comunque sottolineare come il ΔR che ha origine dal reticolo (ΔT_{latt}) varia su scale di tempo molto più lunghe di quello impulsivo originato dal processo di termalizzazione degli elettroni, per cui può essere facilmente disaccoppiato dall'effetto puramente elettronico in un esperimento risolto in tempo.

Modello a tre temperature

Recenti esperimenti hanno messo in luce l'inadeguatezza del semplice modello a due temperature per giungere ad una descrizione attraverso un *modello a tre temperature* [14].

Se λ è anisotropa e dipende fortemente dal tipo di eccitazione indotta nel sistema, gli elettroni cedono energia solamente ad un ristretto numero di fononi mentre la maggior parte dei modi reticolari non risente dell'accoppiamento. Solo in seguito i fononi più fortemente accoppiati raggiungono l'equilibrio con gli elettroni e cedono la propria energia ai rimanenti fononi. Questo secondo rilassamento avviene su scale di tempi $\tau_\beta \sim 2 ps$, più lunghe rispetto allo scattering elettrone-fonone $\tau_\alpha \sim 300 fs$. [14]

Tutto questo porta ad una modifica del sistema di equazioni scritto in precedenza con l'introduzione di una terza equazione che tiene conto della variazione della temperatura dei fononi più fortemente accoppiati con una modifica

delle rimanenti due:

$$\begin{aligned}
C_{el}(T_{el}) \frac{dT_{el}}{dt} &= I_{ext} - g \cdot (T_{el} - T_{latt}) \\
C_p(T_p) \frac{dT_p}{dT} &= g \cdot (T_{el} - T_p) - C_p \frac{(T_p - T_{latt})}{\tau_\beta} \\
C_{latt}(T_{latt}) \frac{dT_{latt}}{dt} &= C_p \frac{(T_{el} - T_{latt})}{\tau_\beta}
\end{aligned}$$

Dove con T_p intendiamo la temperatura di quella frazione di fononi (attorno al 20%, [14]) che sono più fortemente accoppiati con gli elettroni e che in seguito rilassano cedendo energia ai rimanenti fononi freddi con un tempo medio di scattering dell'ordine di τ_β , mentre C_p e C_{latt} sono le capacità termiche del sottoinsieme di fononi più accoppiati e del resto del reticolo, rispettivamente.

La conseguenza di questo modello è che la temperatura elettronica ha una dinamica caratterizzata dai due decadimenti esponenziali τ e τ_β , che contengono le informazioni sull'accoppiamento el-ph e ph-ph. Questa doppia dinamica è stata recentemente evidenziata attraverso misure di fotoemissione risolta in tempo [14].

2.3 Il Bi2212

Il $Bi_2Sr_2Ca_1Cu_2O_{8+\delta}$ (Bi2212) è un materiale appartenente alla famiglia dei cuprati (materiali caratterizzati dalla presenza di piani bidimensionali rame-ossigeno) che sono i rappresentanti principali dei superconduttori ad alta temperatura critica.

Come vediamo dalla figura 2.10 la struttura tridimensionale è ortorombica e c è l'asse principale. I piani Bi-O sono piani di sfaldamento a causa del debole legame chimico che si instaura tra di essi. Il cristallo viene quindi sfaldato lungo questi piani, di conseguenza l'asse c è perpendicolare ai piani di sfaldatura.

Caratteristica fondamentale di questo materiale è l'anisotropia. Infatti le proprietà fisiche lungo l'asse c sono molto diverse da quelle dei piani ab (un esempio è la conducibilità termica).

Come già detto sopra il Bi2212 è isolante a drogaggio nullo ($\delta = 0$) a causa delle forti interazioni elettroniche. Per drogaggio intendiamo la variazione dei rapporti stechiometrici nel materiale. Aumentando δ viene aumentato il numero di atomi di ossigeno, creando delle buche nella banda di conduzione. Al variare del drogaggio possiamo avere tre tipi di regime: underdoped

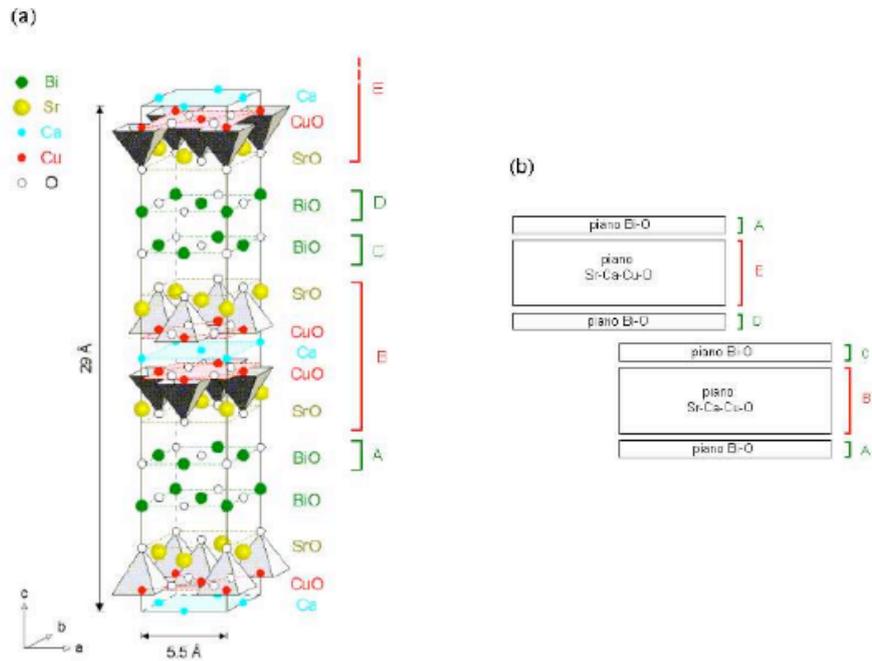


Figura 2.10: La cella unitariadel Bi2212.

($\delta < \delta_{opt}$), optimallydoped ($\delta = \delta_{opt}$) e overdoped ($\delta > \delta_{opt}$). Il drogaggio ottimale δ_{opt} è quel drogaggio per il quale il materiale presenta la temperatura critica massima.

In figura 2.11 è riportato il diagramma delle fasi Temperatura-Drogaggio. Come vediamo il valore della temperatura critica sotto la quale il materiale diventa superconduttore aumenta con il drogaggio fino al drogaggio ottimale per poi tornare a scendere. Per $T_c < T < T^*$ il Bi2212 underdoped presenta la fase di pseudogap in cui si ha evidenza sperimentale di una gap nelle eccitazioni ma non esiste uno stato condensato macroscopico superconduttivo [4]. Questo fenomeno è tuttora oggetto di dibattito.

La nostra esperienza è condotta su tre campioni di Bi2212, un tipo per drogaggio; per quanto riguarda le temperature critiche abbiamo:

	T_c
Bi2212 Underdoped	82 K
Bi2212 Optimallydoped	96 K
Bi2212 Overdoped	78 K

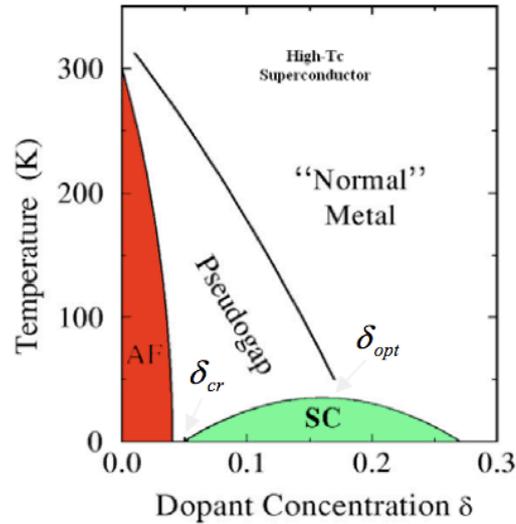


Figura 2.11: Spazio delle fasi $T - \delta$.

Proprietà ottiche

Le proprietà ottiche di un materiale possono essere descritte per mezzo della funzione dielettrica $\epsilon(\omega)$, come descritto nella sezione 2.2.2. In particolare la sua parte immaginaria è legata al coefficiente di assorbimento $\alpha = \frac{4\pi k}{\lambda} = \frac{4\pi\sigma_1}{nc}$, dove κ è la parte immaginaria dell'indice di rifrazione, legato alla conducibilità ottica dalle relazioni sopra riportate.

Riporto in figura 2.12 il coefficiente di assorbimento del Bi2212 misurato a temperatura ambiente ($T \sim 300K$) [5]. Dal grafico notiamo una variazione brusca del coefficiente di assorbimento attorno 10000 cm^{-1} ($10000 \text{ cm}^{-1} = 1000 \text{ nm}$, regione che andremo ad indagare col probe). In particolare notiamo che l'assorbimento aumenta al di sotto di questo valore di energia. Questo comportamento è dovuto al fatto che a frequenze inferiori a 8065 cm^{-1} ($8065 \text{ cm}^{-1} \sim 1200 \text{ nm} \sim 1 \text{ eV}$) lo spettro è dominato dalle transizioni intrabanda (la banda 2p dell'ossigeno, in cui sono presenti buche dovute al doping), ben rappresentabili dal modello di Drude. Per energie superiori (1.5 eV) la situazione cambia, infatti l'energia dell'eccitazione è tale da indurre transizioni interbanda tra un livello occupato 3d del rame e la banda 2p dell'ossigeno (chiamate transizioni di charge transfer).

Notiamo variazioni al variare del drogaggio, infatti le transizioni che avvengono in questo campione sono transizioni che riguardano le bande dell'ossigeno e al variare del doping varia anche il coefficiente di assorbimento.

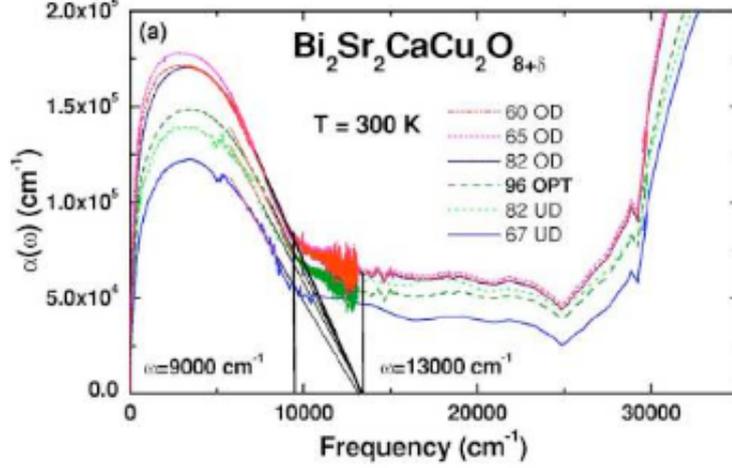


Figura 2.12: Spettro di assorbimento del Bi2212 a vari drogaggi [5].

Presento ora la simulazione della riflettività del Bi2212, nel range di frequenze utilizzato. L'idea è quella di creare un modello per la funzione dielettrica e la conducibilità ottica del Bi2212 fornite dalla letteratura esistente [17], [5], e da questo ottenere poi la riflettività $R = \left| \frac{1-\sqrt{\epsilon}}{1+\sqrt{\epsilon}} \right|^2$. E' stato utilizzato il software Reffit [18], il quale permette di modellizzare la funzione dielettrica di un materiale tramite una somma di oscillatori alla Drude-Lorentz. Posso scegliere di volta in volta un modello per la funzione dielettrica adatto al caso in esame.

Riporto la funzione alla Lorentz utilizzata per modellizzare la funzione dielettrica:

$$\epsilon(\omega) = \epsilon_{\infty} + \sum_j \frac{\omega_{pj}^2}{(\omega_j^2 - \omega^2) - \frac{i\omega}{\tau_j}}$$

dove ϵ_{∞} rappresenta il contributo degli oscillatori ad altissime frequenze. Per il termine alla Drude basta porre $\omega_j = 0$.

Con la condizione $\epsilon_{\infty} = 1$ questa relazione soddisfa le regole di Kramers-Kronig.

In figura 2.13 sono riportate la funzione dielettrica e la conducibilità ottica prese da [17] e utilizzate nella nostra simulazione.

La funzione dielettrica è stata modellizzata con una funzione alla Drude ed un sistema di tre oscillatori:

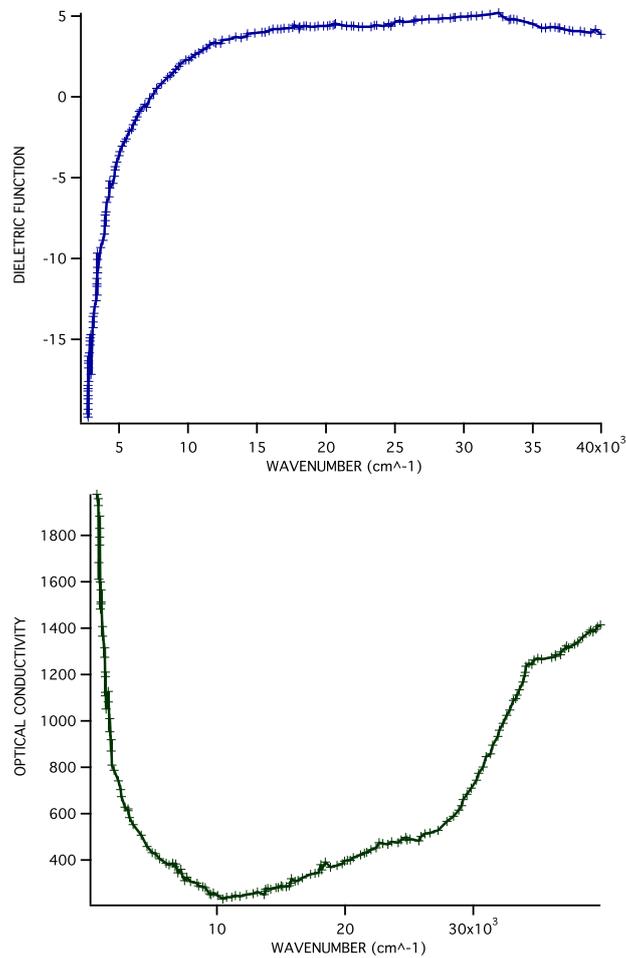


Figura 2.13: Parte reale della funzione dielettrica (sopra) e della conducibilità ottica (sotto) del Bi2212 optimallydoped [17].

1) Il comportamento a basse frequenze è stato simulato utilizzando una funzione alla Drude che tiene conto della forte correlazione elettronica nel piano ab del Bi2212 [18].

2) E' presente un oscillatore a 1053 cm^{-1} che indica la risonanza con una transizione $O_{2p} \rightarrow Cu_{3d}$.

3) Sono presenti altri due oscillatori a 17051 cm^{-1} e 32900 cm^{-1} , rispettivamente, ad indicare possibili transizioni tra le bande del rame e quelle dell'ossigeno.

Data la funzione dielettrica $\epsilon(\omega)$ è possibile calcolare la riflettività R del campione e la lunghezza di penetrazione (che corrisponde $\frac{2}{\alpha}$) (figura 2.14). In figura 2.15 è riportato l'andamento della riflettività nella regione spettrale di interesse per le nostre misure ($600 < \lambda < 1200 \text{ nm}$).

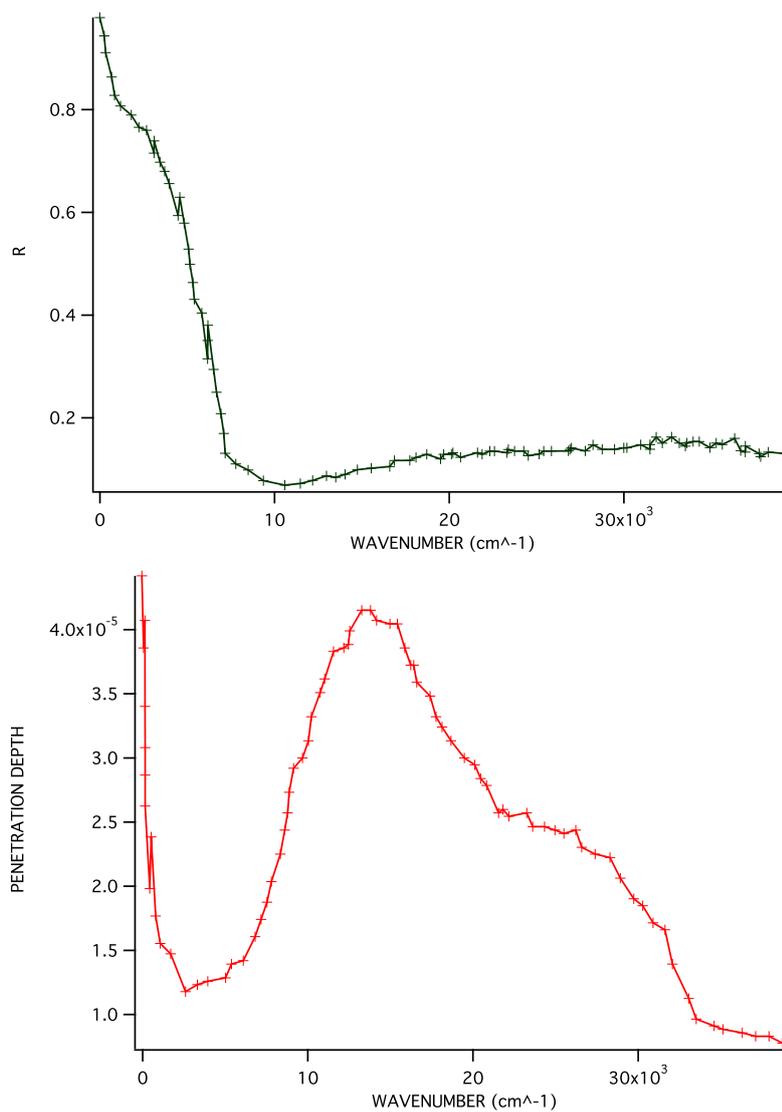


Figura 2.14: Riflettività e lunghezza di penetrazione per il Bi2212 optimallydoped.

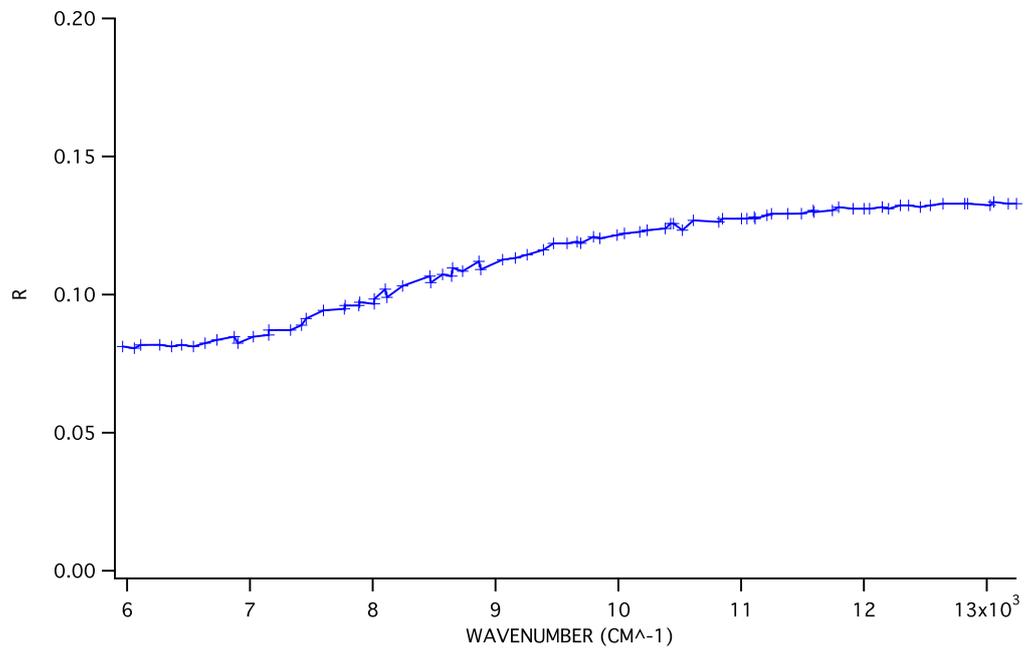


Figura 2.15: Riflettività del Bi2212 optimallydoped tra i 500 ed i 1000 nm.

In conclusione possiamo affermare che la riflettività dei campioni in esame è in media attorno al 9%, nella regione spettrale di nostro interesse. Nella sezione 4.2 confronteremo questi risultati con quelli misurati.

Capitolo 3

Apparato sperimentale

3.1 Laser al femtosecondo

Il laser utilizzato nell'esperimento è un laser impulsato al femtosecondo (10^{-15} s), operante in regime di Mode Locking, composto da un oscillatore (Mira Coherent 900) pompato da un laser in continua (Coherent Verdi V10) che emette radiazione a 547 nm ad una potenza massima di 10 W.

In modalità Mode Locking il laser produce impulsi brevi (~ 120 fs a 800 nm).

La frequenza di ripetizione degli impulsi è pari a 54.3 MHz, quindi gli impulsi sono distanziati tra loro di 18.4 ns.

A questa frequenza di ripetizione corrisponde un'elevata potenza media del fascio (~ 200 mW) che può causare un effetto di riscaldamento medio del campione in analisi.

E' allora necessario, per limitare questi effetti di riscaldamento medio, abbassare la frequenza di ripetizione degli impulsi (repetition rate) e quindi alzare la frequenza di divisione (division rate) tramite un *cavity dumper*.

Questo strumento, costituito da un dispositivo acusto-ottico inserito in cavità, permette di variare a piacere la frequenza di ripetizione degli impulsi da 27.15 MHz (un impulso ogni due) a 200 Hz (un impulso ogni 260000).

3.2 La tecnica Pump and Probe e il Setup utilizzato

L'utilizzo di tecniche ottiche nello studio dei superconduttori nasce in seguito alla necessità di avere risoluzioni temporali dell'ordine di fs, infatti le dinamiche che vogliamo studiare sono dell'ordine di qualche ps mentre i

tempi di risposta dei dispositivi elettronici sono dell'ordine dei ns.

In figura 3.1 riportiamo uno schema del sistema sperimentale utilizzato per effettuare le misure di riflettività risolta in tempo. La tecnica pump-probe consiste nel suddividere il fascio laser in due parti tramite un beam splitter che trasmette il 70% dell'intensità, che viene utilizzato per eccitare il sistema (pump), e riflette il 30% (probe), che viene utilizzato per misurare la variazione delle proprietà ottiche causata dall'impulso di pump.

Il fascio di pump è focalizzato sul campione ad incidenza normale mentre il fascio di probe incide obliquamente in modo da poter misurare la variazione di riflettività.

Il fascio di probe ha una potenza inferiore rispetto alla pompa, così da limitare gli effetti di riscaldamento medio e fare in modo che gli effetti di eccitazione siano dovuti solo al pump. Il fascio di pompa ha di conseguenza solo il compito di eccitare il campione mentre la misura della riflettività è fornita dal probe.

Dopo aver percorso cammini ottici differenti i due fasci si ricombinano sul campione spazialmente e temporalmente. La **coincidenza spaziale** consiste nella sovrapposizione spaziale dei due fasci sul campione. Lo strumento che permette di ottimizzare la sovrapposizione è uno specchio regolato da un motore piezoelettrico che permette di modificare la posizione del fascio di pompa sul campione in maniera molto accurata. Il processo di sovrapposizione è agevolato da una telecamera che permette di monitorare la posizione dei due spot sul campione. La dimensione dei pixel della telecamera è di $7 \mu\text{m}$; l'immagine viene ingrandita con un microscopio 10x. Questa telecamera permette quindi di misurare la dimensione degli spot, procedimento svolto nella sezione 3.4.

La **coincidenza temporale** è invece quella situazione in cui i due fasci hanno una differenza di cammino ottico nulla. Il ritardo tra i due impulsi è regolato mediante una slitta meccanica, inserita lungo la linea di pump, il cui movimento è gestito da un programma computerizzato. La corsa massima della slitta è di 10 cm mentre il passo minimo è di $0.1 \mu\text{m}$.

Il fascio percorre un doppio cammino attraverso la slitta. In particolare a ritardi di $1 \mu\text{m}$ della slitta, tenendo conto del doppio passaggio del fascio nella slitta e della velocità di propagazione della luce, corrisponde un ritardo temporale di $\Delta t = \frac{\Delta x}{c} \cdot 2 = \frac{1\mu\text{m}}{c} \cdot 2 = 6.6 \text{ fs}$.

L'intensità del pump è regolata grazie ad un sistema composto da una lamina $\frac{\lambda}{2}$ (che ritarda di mezz'onda, $\frac{\lambda}{2}$ o π , le componenti del campo elettrico con lunghezza d'onda pari a 800 nm lungo i due assi ottici) e da un polarizzatore posto subito dopo. La lamina $\frac{\lambda}{2}$ può essere ruotata per mezzo di un rotatore elettrico controllato via pc.

Il fascio di pump è focalizzato sul campione per mezzo di una lente di 10 cm

di focale.

Infine il probe viene focalizzato sul campione per mezzo di un doppietto acromatico di 10 cm di focale con coating antiriflesso nel range di 650-1050 nm. L'utilizzo del doppietto è importante in quanto garantisce che le lunghezze d'onda diverse vengano concentrate tutte nello stesso punto (viene quindi corretto il fenomeno dell'aberrazione cromatica).

Il fascio di probe riflesso deve avere una polarizzazione incrociata rispetto al fascio di pump, in modo da poter ridurre, mediante un polarizzatore, eventuali segnali spuri dovuti allo scattering del fascio di pump sul rivelatore.

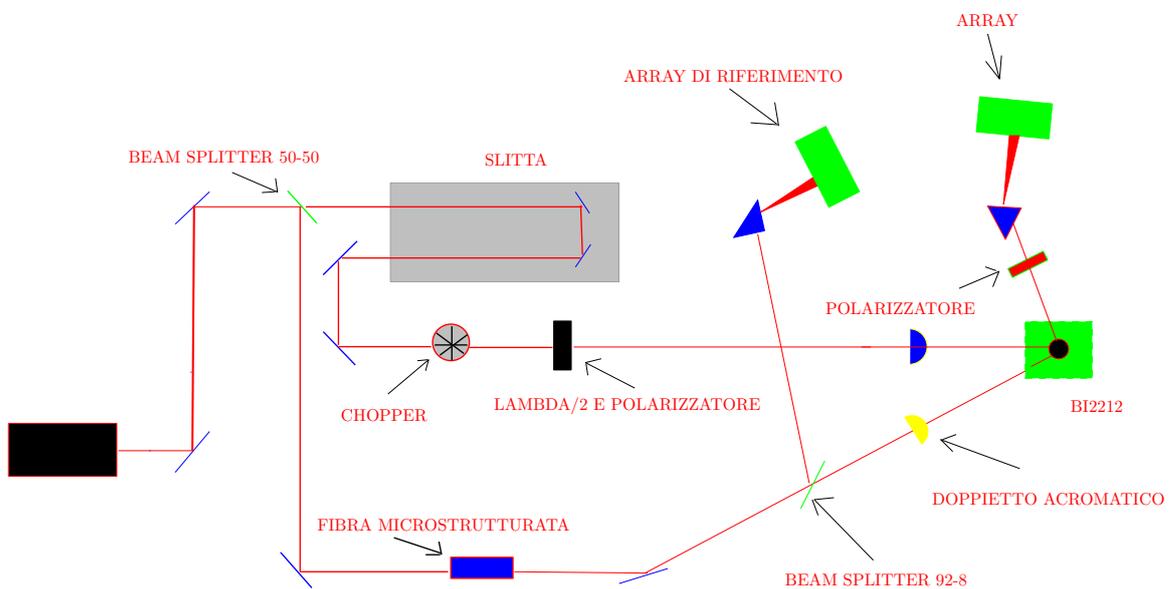


Figura 3.1: Sistema sperimentale utilizzato.

Probe supercontinuo

Lungo la linea di probe è inserita una *fibra microstrutturata* non lineare per generare un supercontinuo, ovvero una radiazione coerente ad ampio spettro, che, nel nostro caso, va dai 450 nm ai 1600 nm. Nelle misure riportate in questo lavoro di tesi utilizzeremo soltanto la porzione di spettro compresa tra 600 nm e 1100 nm.

La causa principale della generazione del supercontinuo è l'automodulazione di fase (SFM). L'indice di rifrazione di un mezzo non lineare dipende dal profilo temporale dell'intensità dell'impulso in entrata. Se abbiamo un im-

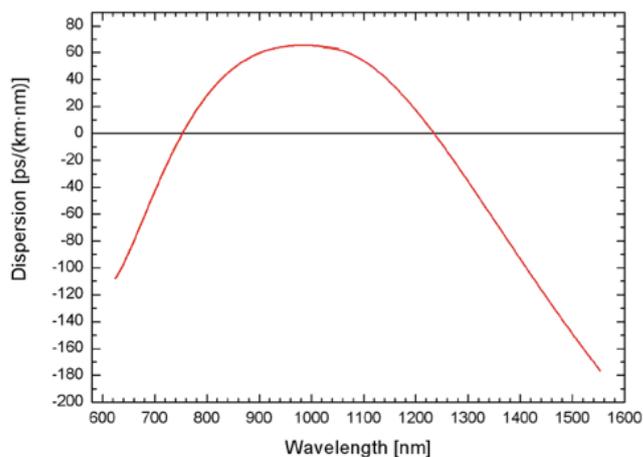


Figura 3.2: Curva di dispersione della fibra microstrutturata [7].

pulso ultracorto, a causa dell'elevata energia di picco, gli effetti non lineari dominano e si ha la formazione di nuove componenti spettrali. All'uscita della fibra si ha ancora luce coerente, ma con un allargamento dello spettro. La fibra da noi utilizzata è caratterizzata dalla disposizione periodica di fori di lungo il suo rivestimento esterno (cladding). Modificando la struttura periodica dei fori è possibile modificare le proprietà di dispersione della fibra e modificare la lunghezza d'onda di zero dispersione della fibra (cioè lunghezza d'onda in corrispondenza della quale non si ha dispersione della velocità di gruppo durante la propagazione in fibra). Nel nostro caso la lunghezza d'onda di zero dispersione è 750 nm, valore prossimo alla lunghezza d'onda della sorgente (800 nm). In questo modo la dispersione subita dall'impulso è minima e la durata dell'impulso rimane invariata durante la propagazione in fibra. L'intensità del campo elettrico è, dunque, sufficientemente elevata perchè i fenomeni non lineari (proporzionali alla intensità) dominino sugli effetti dispersivi e di conseguenza si ottiene un supercontinuo migliore.

In figura 3.3 è riportato lo spettro ottenuto con repetition rate pari a 543 kHz e potenza in ingresso di 5 mW [7]. La misura del contenuto spettrale dello spettro prodotto dalla fibra (figura 3.3) non è sufficiente a caratterizzarlo completamente. Per poter utilizzare questa sorgente come probe dell'esperimento è necessario conoscere la distribuzione spaziale e temporale delle diverse componenti dello spettro che si propagano nella fibra con velocità di gruppo diverse. La sezione 3.4 è dedicata allo sviluppo di una tecnica per la

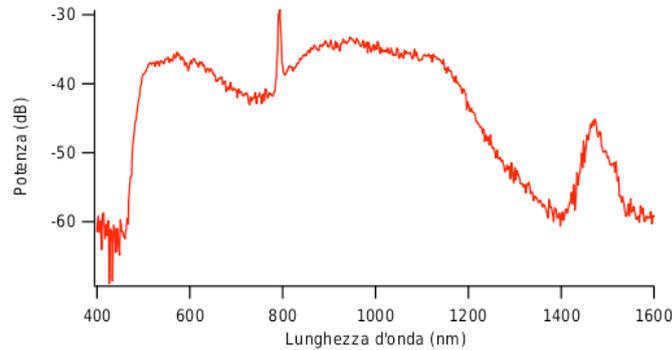


Figura 3.3: Spettro ottenuto con potenza in ingresso pari a 5 mW.

caratterizzazione del profilo temporale del supercontinuo.

Procedura di acquisizione

Per avere la necessaria risoluzione spettrale, il supercontinuo viene disperso da un prisma (per i dettagli vedere sezione 3.2.1) e focalizzato su un *array di fotodiodi* da 128 pixel, ovvero un sistema di 128 fotodiodi affiancati l'uno all'altro. Sui diversi pixel, arrivano quindi le diverse componenti del supercontinuo.

Con questo array è quindi possibile acquisire l'intensità di probe riflessa dal campione. La scansione dei 128 pixel avviene a 2 MHz, per cui la scansione dell'array si conclude in $64 \mu s$ (15.625 kHz). Questo vuol dire che i tempi di acquisizione dell'array sono in generale più lunghi rispetto ai tempi che intercorrono tra un impulso ed il successivo. Lavorando con una frequenza di ripetizione degli impulsi di 108 kHz è chiaro che una singola scansione dell'array comprenderà il contributo di più impulsi.

Gli array vengono quindi fatti lavorare in modalità integrata in cui il segnale viene integrato in un determinato tempo (che ovviamente deve essere maggiore di $64 \mu s$). In questo modo ogni spettro di probe acquisito deriva dall'interazione di un numero n di impulsi (che è possibile selezionare) con il campione.

La parte fondamentale della procedura di acquisizione è la differenza tra gli spettri di probe acquisiti con e senza eccitazione di pompa. In questo modo è possibile misurare la variazione di riflettività del campione in esame.

Questo viene fatto inserendo lungo il cammino di pompa un *chopper meccanico*, il quale modula il fascio. La modulazione avviene a bassa frequenza,

attorno a 10-20 Hz, in modo da poter avere più acquisizioni dell'array all'interno di un ciclo di modulazione.

Tramite un fotodiodo in cui viene focalizzato un riflesso del fascio di pompa in uscita dal chopper posso monitorare e digitalizzare la modulazione introdotta. La digitalizzazione consiste nell'assegnare ai punti nei quali il segnale di pompa è acceso il valore +1, ai punti in cui la pompa è spenta il valore -1 e ai punti che si trovano nei passaggi di stato il valore 0.

Lungo il fascio di probe prima del campione è inserito un altro array di fotodiodi di riferimento con lo scopo di monitorare le fluttuazioni di intensità del laser.

Il segnale dei due array di fotodiodi è acquisito contemporaneamente e di questi ne viene fatto il rapporto, eliminando così le fluttuazioni di intensità. Questo rapporto è la riflettività statica R ($R = \frac{I_{refl}}{I_{inc}}$) del materiale. Il riferimento si ottiene grazie all'aggiunta lungo la linea di probe di un beam splitter che trasmette il 92% della radiazione e riflette l'8%. E' fondamentale, prima di ogni misura, assicurarsi che segnale e riferimento siano dispersi allo stesso modo così da poter misurare effettivamente la riflettività del materiale e, di conseguenza, la sua variazione esatta.

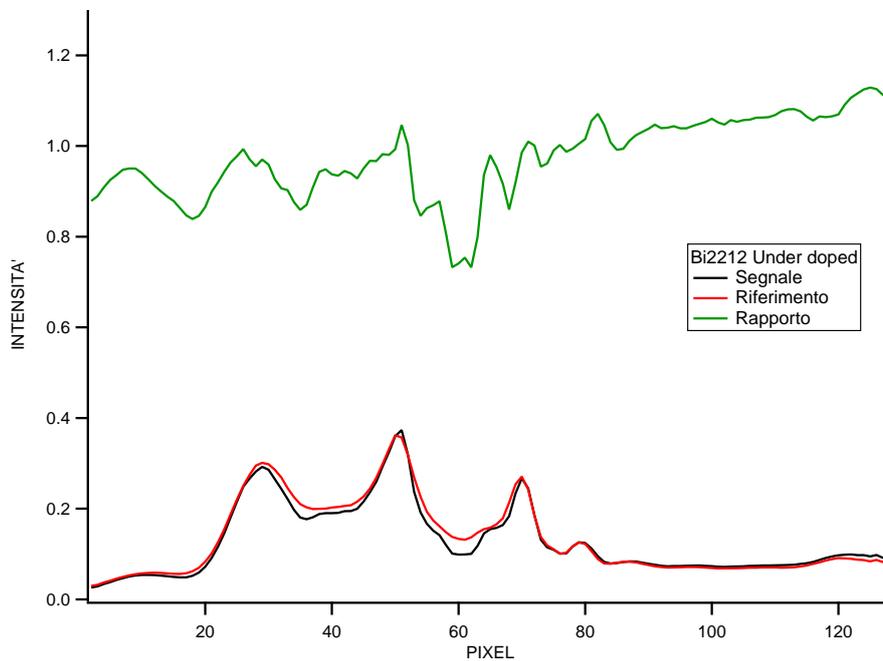


Figura 3.4: Segnale, riferimento e loro rapporto.

Sfruttando la modulazione della pompa introdotta dal chopper viene misurato lo spettro della riflettività con e senza l'interazione di pompa ed questi spettri viene fatta la differenza. In questo modo si ottiene uno spettro che fornisce la variazione di riflettività su tutto lo spettro indotta dall'eccitazione di pompa per ogni ritardo fissato (slitta ferma). La variazione di riflettività viene ogni volta divisa per R (riflettività statica) in modo da ottenere la variazione di riflettività relativa $\frac{\Delta R}{R}$.

Il procedimento di acquisizione consiste nel ripetere la procedura descritta sopra un numero di volte pari a 2000-10000 per ogni ritardo fissato. In seguito tutto questo viene ripetuto per ogni ritardo tra pompa e probe desiderato muovendo la slitta via pc tramite un programma recedentemente realizzato in LabVIEW.

Uno scan completo consiste nella media di un numero di misure che si può impostare dal programma.

3.3 Dispersione del supercontinuo sull'array di fotodiodi

Dal momento che per l'acquisizione utilizziamo un array di fotodiodi di 128 pixel è fondamentale conoscere la posizione sui pixel dell'array delle varie lunghezze d'onda del probe supercontinuo.

Per fare questo disperdiamo il fascio tramite un prisma triangolare equilatero di vetro SF11, del quale conosciamo l'indice di rifrazione in funzione della lunghezza d'onda tramite la relazione di Sellmeier (relazione che permette di calcolare l'indice di rifrazione in funzione delle caratteristiche del materiale). Conoscendo l'angolo di incidenza ($\theta_i \simeq 60^\circ$) posso calcolare la dispersione angolare δ del fascio sull'array tramite la relazione:

$$\delta(^{\circ}) = \theta_i - \alpha + \alpha \sin[(\sin \alpha)(n^2(\lambda) - \sin^2 \theta_i) - \sin \theta_i \cos \alpha] \quad (3.1)$$

dove α è l'angolo del prisma (60°).

Attraverso la relazione 3.1 è possibile simulare la curva di dispersione sull'array (fig 3.6).

Per calibrare il setup si pone un filtro interferenziale (che ha una larghezza di banda pari ha $\Delta\lambda = 10$ nm) appena dopo la fibra in modo da selezionare una particolare lunghezza d'onda e vedere sul monitor in corrispondenza di quale pixel essa viene dispersa.

La lunghezza d'onda scelta come riferimento è $\lambda = 800$ nm, posizionata sul pixel numero 70. Essa viene dispersa ad un angolo di $\delta_0 = 64^\circ$. Posso allora riscalarare l'angolo di dispersione relativamente a questa lunghezza d'onda e calcolare la deflessione del fascio sull'array rispetto allo zero appena posto tramite la relazione:

$$\delta x(cm) = D \tan(\delta - \delta_0)$$

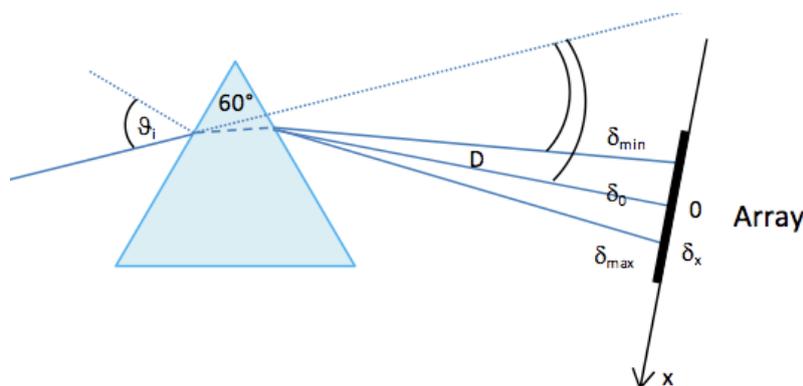


Figura 3.5: Geometria della dispersione del supercontinuo sull'array.

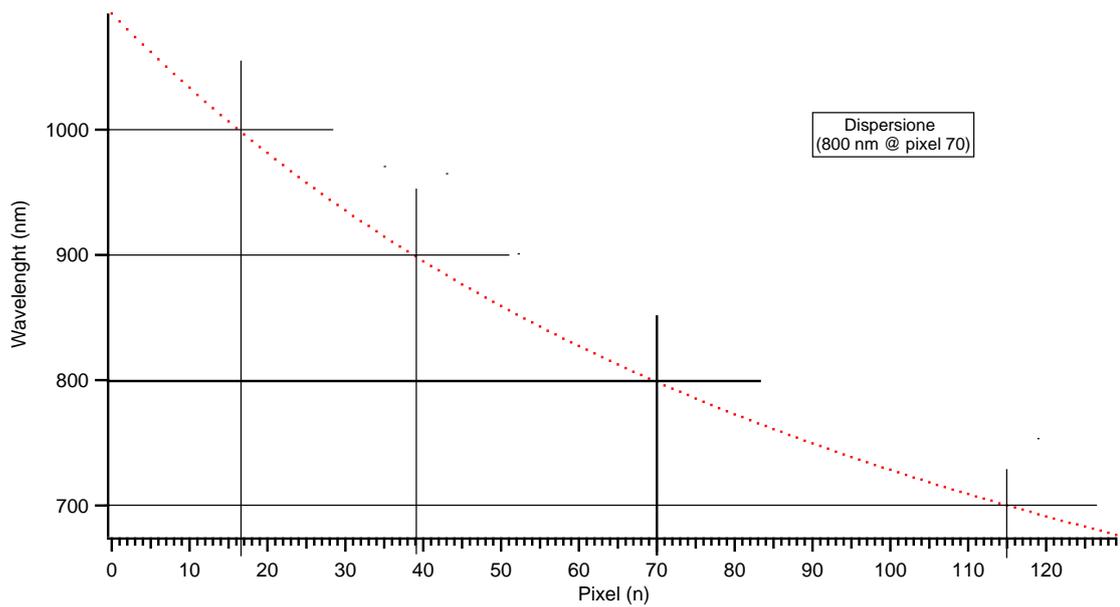


Figura 3.6: Simulazione della curva di dispersione del fascio di probe sull'array di fotodiodi; da questo grafico posso vedere a quale pixel corrispondono le varie lunghezze d'onda.

dove D è la distanza del prisma dal fotodiode (14.5 cm). Utilizzando altri filtri interferenziali (a 700 nm e 900 nm) si è verificata per almeno tre punti la dispersione calcolata attraverso l'equazione 3.1.

3.4 Caratterizzazione dell'impulso

Prima di procedere alla misura è necessario caratterizzare spazialmente e temporalmente gli impulsi laser.

Per ottenere la **dimensione degli spot** abbiamo acquisito via pc le imma-

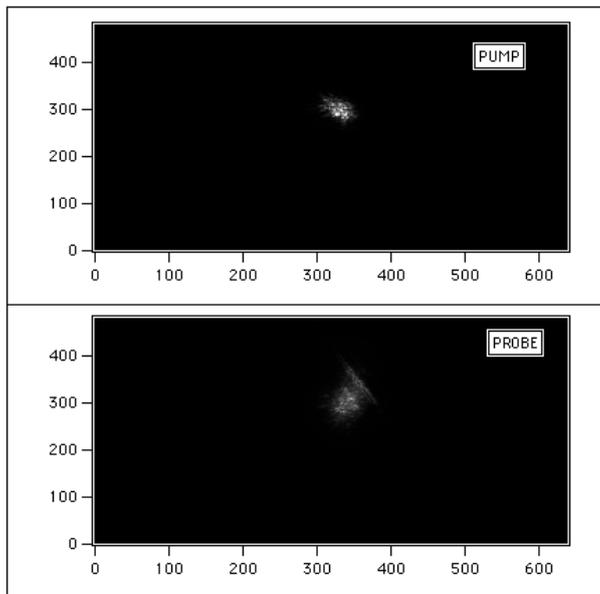


Figura 3.7: Immagine degli spot presa con la telecamera (in pixel).

gini fornite dalla telecamera (figura 3.7) e da queste abbiamo estrapolato la FWHM attraverso un programma realizzato in LabVIEW. Questo programma estrae il profilo gaussiano dell'intensità degli spot e da questo è possibile misurare la loro dimensione.

- Dimensione del fascio di pump: $\sim 14.7 \mu\text{m}$
- Dimensione del fascio di probe: $\sim 29 \mu\text{m}$

Il passo successivo consiste nella **caratterizzazione temporale del supercontinuo**, in modo da conoscere il profilo temporale delle varie frequenze all'interno del probe.

Per caratterizzare la struttura temporale dell'impulso, si è utilizzato il diossido di vanadio (VO_2).

Questo materiale presenta una transizione di fase da isolante a metallo al di sopra della temperatura critica di circa 340 K [19]. Questa transizione comporta una modifica della struttura cristallina del VO_2 che causa la variazione

delle proprietà ottiche del sistema, tra le quali la riflettività.

E' possibile indurre questa transizione in modo ottico eccitando un film sottile tramite un impulso laser ultracorto (~ 120 fs) con intensità maggiore di una soglia di circa $200 \frac{\mu J}{cm^2}$ e studiare la risposta del sistema tramite misure di riflettività risolte in tempo. La risposta $g(t)$ del VO_2 è una funzione a

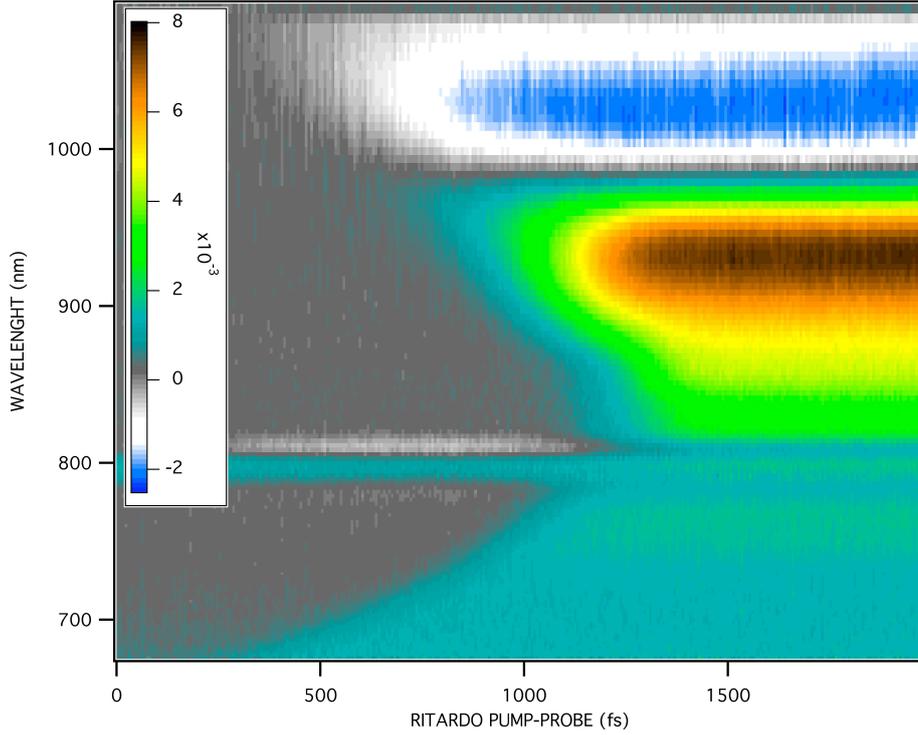


Figura 3.8: Variazione della riflettività nel VO_2 .

scalino:

$$g(t) = \begin{cases} 0 & \text{se } t < t_{pump} \\ 1 & \text{se } t > t_{pump} \end{cases} \quad (3.2)$$

dove t_{pump} è il momento in cui l'impulso di pompa induce la transizione di fase.

Il primo passo è quello di fittare i dati ottenuti tramite la convoluzione del profilo del segnale con la risposta del sistema.

La funzione di convoluzione è la seguente:

$$f(t) = \int_{-\infty}^{+\infty} I_{Probe}(t')g(t - t'), dt' \quad (3.3)$$

dove $g(t)$ rappresenta la risposta del sistema e I_{Probe} rappresenta il profilo temporale gaussiano dell'impulso di probe che voglio ricavare.

Avendo misurato $f(t)$ (vedi figura 3.8) è dunque possibile estrapolare il profilo temporale $I_{Probe}(t)$ alle diverse lunghezze d'onda.

La figura 3.9 rappresenta la deconvoluzione del profilo temporale dell'im-

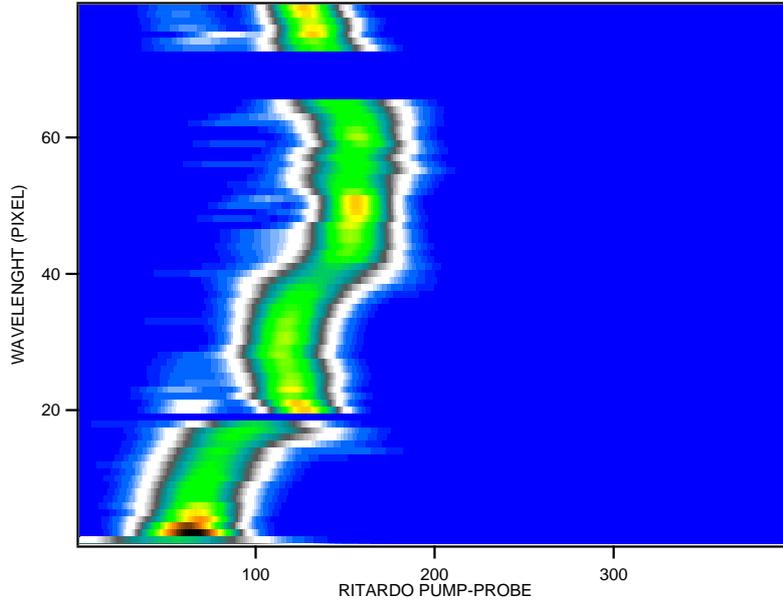


Figura 3.9: Deconvoluzione dell'impulso.

pulso dalla procedura descritta nell'equazione 3.3.

Notiamo che l'intero impulso di probe si estende in un intervallo temporale di circa 1 picosecondo.

L'impulso sembra essere più stretto nella zona compresa tra 900 nm e i 1000 nm ($FWHM \sim 120 - 140$ fs) mentre si allarga nella zona compresa tra 600 nm e 800 nm ($FWHM \sim 200$ fs).

Per avere una stima più precisa del profilo temporale dell'impulso è conveniente passare ad un approccio diretto facendo un'autocorrelazione dell'impulso di pump con quello di probe tramite un cristallo di BBO. Dalla frequenza somma generata dal BBO in condizione di sovrapposizione spaziale e temporale di pump e probe è infatti possibile ricostruire il profilo temporale del probe.

Analisi della componente a 800 nm

Un aspetto degno di nota dell'impulso in uscita dalla fibra è rappresentato dalla sua componente ad 800 nm.

Nella misura riportata in figura 3.6 si nota un comportamento anomalo del segnale in corrispondenza degli 800 nm, in cui non si rileva un segnale corrispondente alla variazione di riflettività.

Questo viene spiegato dal fatto che essa è molto in ritardo rispetto al resto dell'impulso, caratteristica dovuta alla generazione dell'impulso all'interno della fibra. Se infatti andiamo ad effettuare una scansione spostando la slitta in un intervallo che va dai -5800 ai -5400 μm (anticipando quindi il fascio di pompa) notiamo un picco nella variazione di riflettività in corrispondenza proprio degli 800 nm.

Nello studio dei tempi di rilassamento del Bi2212 in corrispondenza degli 800 nm di probe è necessario tenere conto di questo fenomeno.

Capitolo 4

Risultati sperimentali

4.1 Caratterizzazione degli spettri del Bi2212

Prima di effettuare misure fuori equilibrio abbiamo acquisito gli spettri della riflettività del Bi2212 per i vari drogaggi.

Mediante il nostro sistema di acquisizione siamo in grado di misurare il segnale (ovvero il fascio di probe riflesso), il riferimento (che consiste in una porzione del fascio di probe prima di incidere sul campione) e il rapporto tra i due. Il rapporto rappresenta una stima della riflettività dei campioni, infatti ricordo che:

$$R = \frac{E_{rifl}^2}{E_{inc}^2} \propto \frac{I_{rifl}}{I_{inc}}$$

Tenendo conto che al riferimento arriva il 4% e al segnale il 92% e supponendo che l'intensità incidente sia proporzionale a quella del riferimento, si ha che $I_{inc} = I_{refer} \cdot \left(\frac{0.92}{0.04} = 23\right)$. In questo caso si è supposto che non ci sia un significativo assorbimento da parte delle lenti lungo il cammino di probe. La riflettività si trova allora ponendo:

$$R = \frac{I_{rifl} (=Segnale)}{I_{inc}} = \frac{I_{rifl}}{I_{refer} \cdot 23}$$

Riporto in figura 4.1 il valore della riflettività statica misurato per i nostri tre campioni con la procedura appena descritta.

Notiamo delle oscillazioni molto marcate soprattutto attorno ad 800 nm. Queste oscillazioni molto probabilmente non hanno un significato fisico in quanto derivano dalla non perfetta sovrapposizione del segnale con il riferimento.

Dalla misura siamo comunque in grado di apprezzare l'andamento della riflettività del Bi2212. In particolare per il campione optimally doped notiamo

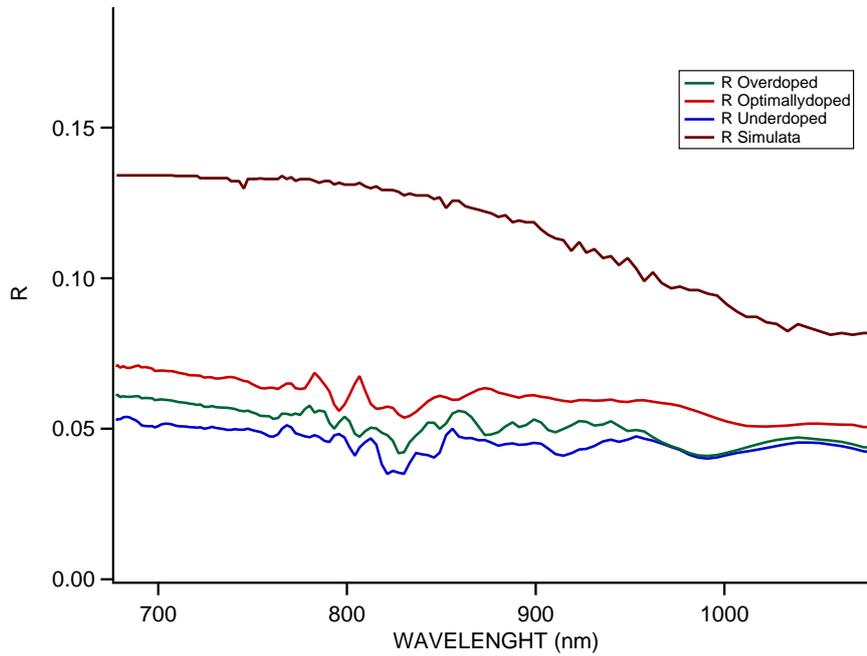


Figura 4.1: Riflettività statica dei nostri campioni in funzione della lunghezza d'onda.

una riflettività che va dal 5% (lontano infrarosso) all'8% (650 nm).

Si osserva che questo andamento è simile a quello ricavato dalla simulazione della sezione 3.2 per il Bi2212 optimallydoped in cui si osservava in media una riflettività del 10% che si abbassava nel lontano infrarosso come riportato in figura 4.1.

La discrepanza del valore assoluto tra quello misurato e quello simulato è data dal fatto che nella ϵ_∞ usata nella simulazione (sezione 2.3) probabilmente non sono stati inclusi degli oscillatori.

Sottolineo comunque che questa è un'indagine qualitativa; è auspicabile che in futuro la riflettività del Bi2212 venga caratterizzata in modo più preciso.

4.2 Misure di linearità

Nelle misure presentate in questa sezione viene analizzata la risposta del sistema al variare dell'intensità dell'eccitazione (misure di linearità).

A ritardo fissato (slitta ferma) misuriamo la variazione di riflettività al variare dell'intensità di pompa e questo viene fatto ruotando la lamina $\frac{\lambda}{2}$ di 45° attraverso un rotatore meccanico. L'angolo 0 corrisponde al valore di intensità minima mentre l'angolo di 45° corrisponde al valore di intensità massima, entrambi verificati attraverso un fotodiodo. In ogni misura abbiamo preso due punti per angolo per un totale di 90 punti.

La formula che fornisce l'intensità in funzione dell'angolo del rotatore in un sistema composto da una lamina $\frac{\lambda}{2}$ e da un polarizzatore è:

$$I(\theta) = (\sin^2\theta - \cos^2\theta)^2 \quad (4.1)$$

Per ottenere la risposta in funzione dell'intensità devo quindi convertire l'asse delle ascisse attraverso la formula 4.1.

Presento nelle figure 4.2, 4.3 e 4.4 le misure sui tre campioni a ritardo nullo. Il division rate utilizzato è 500 e quindi la frequenza di ripetizione degli impulsi è molto bassa (0.11 MHz, 1 impulso ogni 9.1 μs).

La risposta del sistema è lineare su tutto lo spettro per il Bi2212 underdoped e optimallydoped (figure 4.2 e 4.3).

Questa linearità si verifica per ogni ritardo tra pompa e probe.

Questo significa che in seguito all'eccitazione di pompa la temperatura elettronica e quella del reticolo variano linearmente: $\Delta T_{el} \propto \Delta R = aI_{pump}$.

Nel caso del Bi2212 overdoped la risposta è lineare per lunghezze d'onda inferiori a 900 nm. Se ci spostiamo nel lontano infrarosso abbiamo una leggera tendenza alla saturazione (figura 4.4). I dati relativi a 910 nm e 980 nm sono infatti interpolati da una polinomiale al secondo ordine.

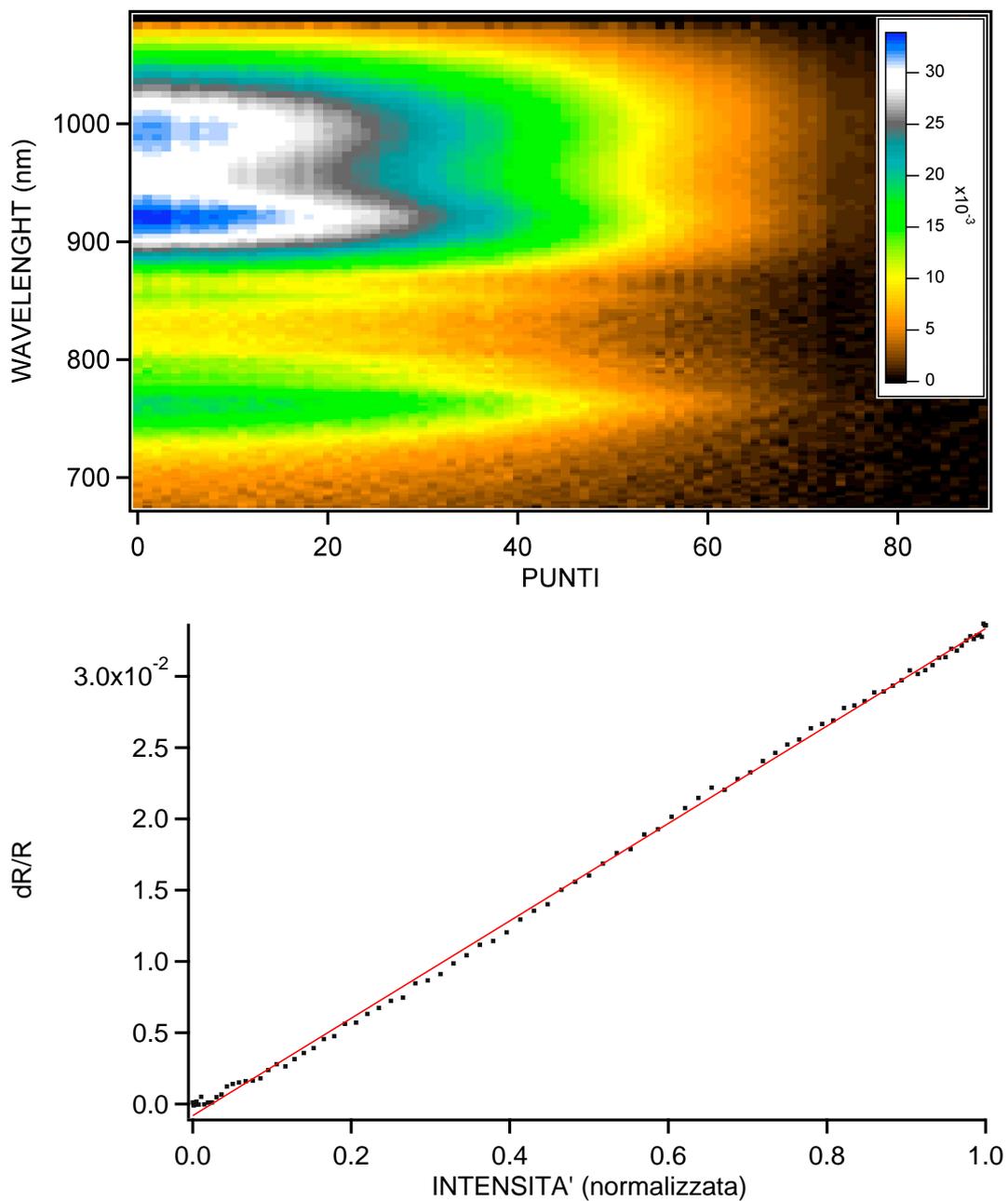


Figura 4.2: Misura di linearità sul Bi2212 underdoped; in basso vediamo il comportamento a 900 nm. L'andamento lineare si ripete su tutto lo spettro.

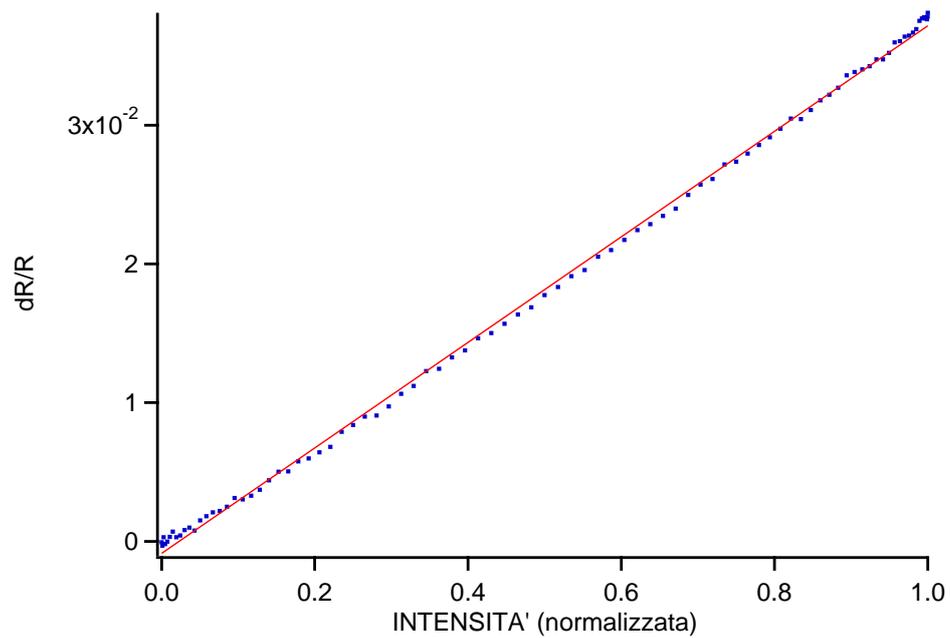
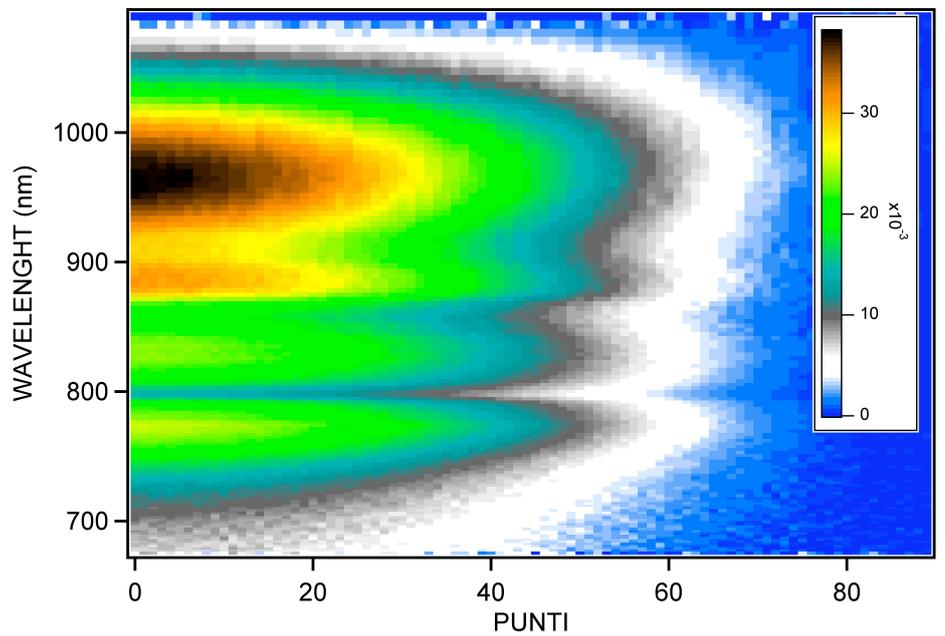


Figura 4.3: Misura di linearità sul Bi2212 optimallydoped; in basso vediamo il comportamento a 810 nm. L'andamento lineare si ripete su tutto lo spettro.

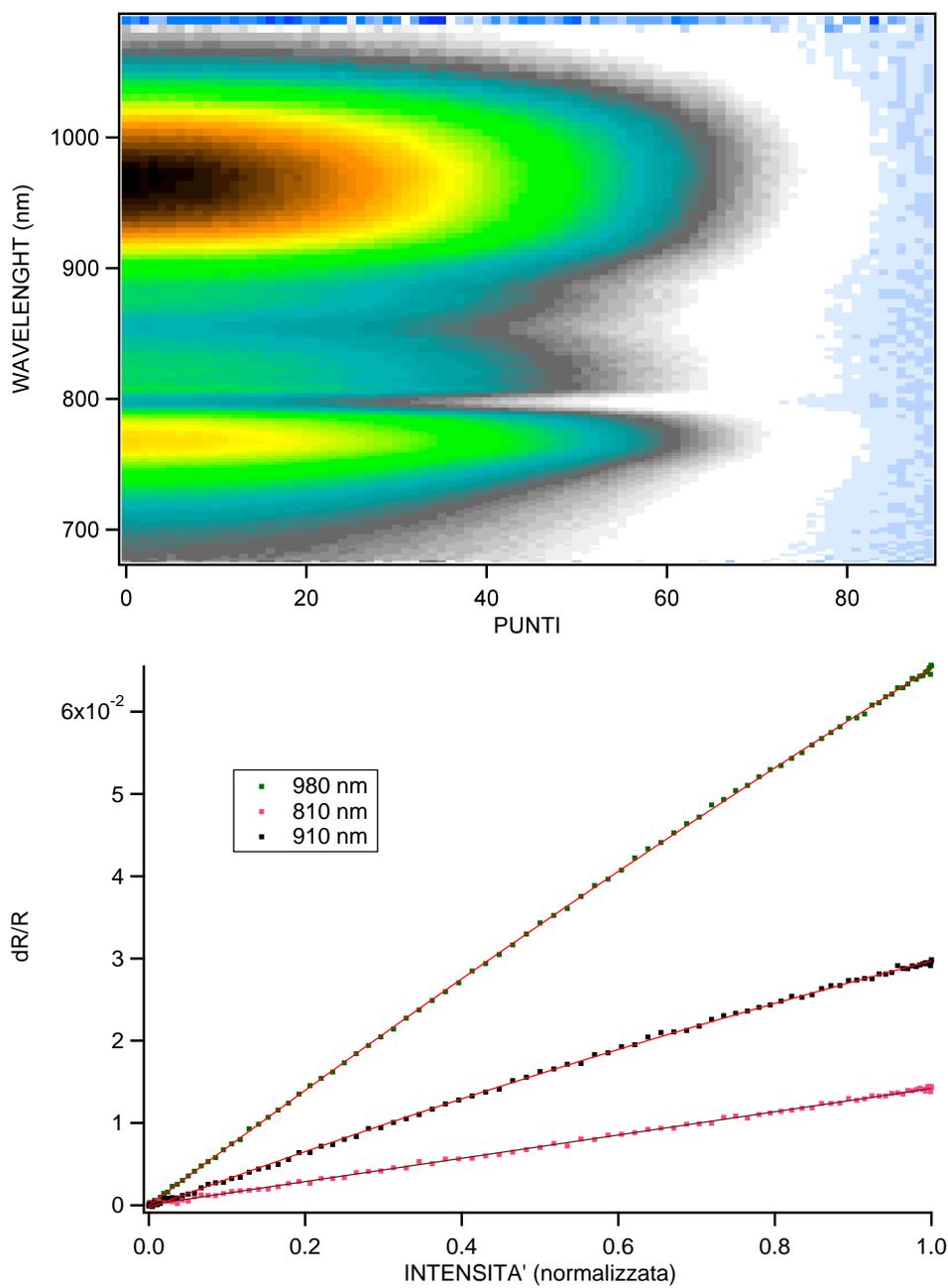


Figura 4.4: Misura di linearità sul Bi2212 overdoped.

4.3 Misura del tempo di rilassamento

L'ultima sezione riguarda la misura dei tempi di rilassamento della variazione di riflettività dei tre campioni in esame nello stato normale ($T \sim 300 K$).

La misura consiste nell'acquisizione di 500 punti per ogni 1000 μm di slitta. Questo vuol dire che un punto corrisponde a 2 μm di percorso della slitta e quindi ad un ritardo temporale di 13.2 fs. La slitta percorre un percorso da -3100 μm a -2100 μm , dove la coincidenza temporale si incontra attorno a -2900 μm .

La frequenza di ripetizione degli impulsi è bassa (0.11 MHz, 1 impulso ogni 9.1 μs). In questo modo è possibile limitare gli effetti di riscaldamento medio del materiale ([13], [7]) per garantire che la perturbazione sia solo ottica e non termica.

La fluena di pompa è per ogni misura $\phi = 130 \frac{\mu J}{cm^2}$.

In figura 4.5 riporto le immagini della variazione di riflettività acquisite per i tre campioni.

Sull'asse delle ascisse abbiamo il ritardo tra pompa e probe, sulle ordinate la lunghezza d'onda di probe e sull'asse z l'intensità del segnale (variazione di riflettività).

Notiamo che la forma del segnale dove la variazione di riflettività è massima ha una particolare forma a boomerang, la quale è dovuta, come visto nella sezione 3.4, alla distribuzione temporale dell'impulso supercontinuo.

La variazione di riflettività è positiva su tutto lo spettro, in accordo con la letteratura [20].

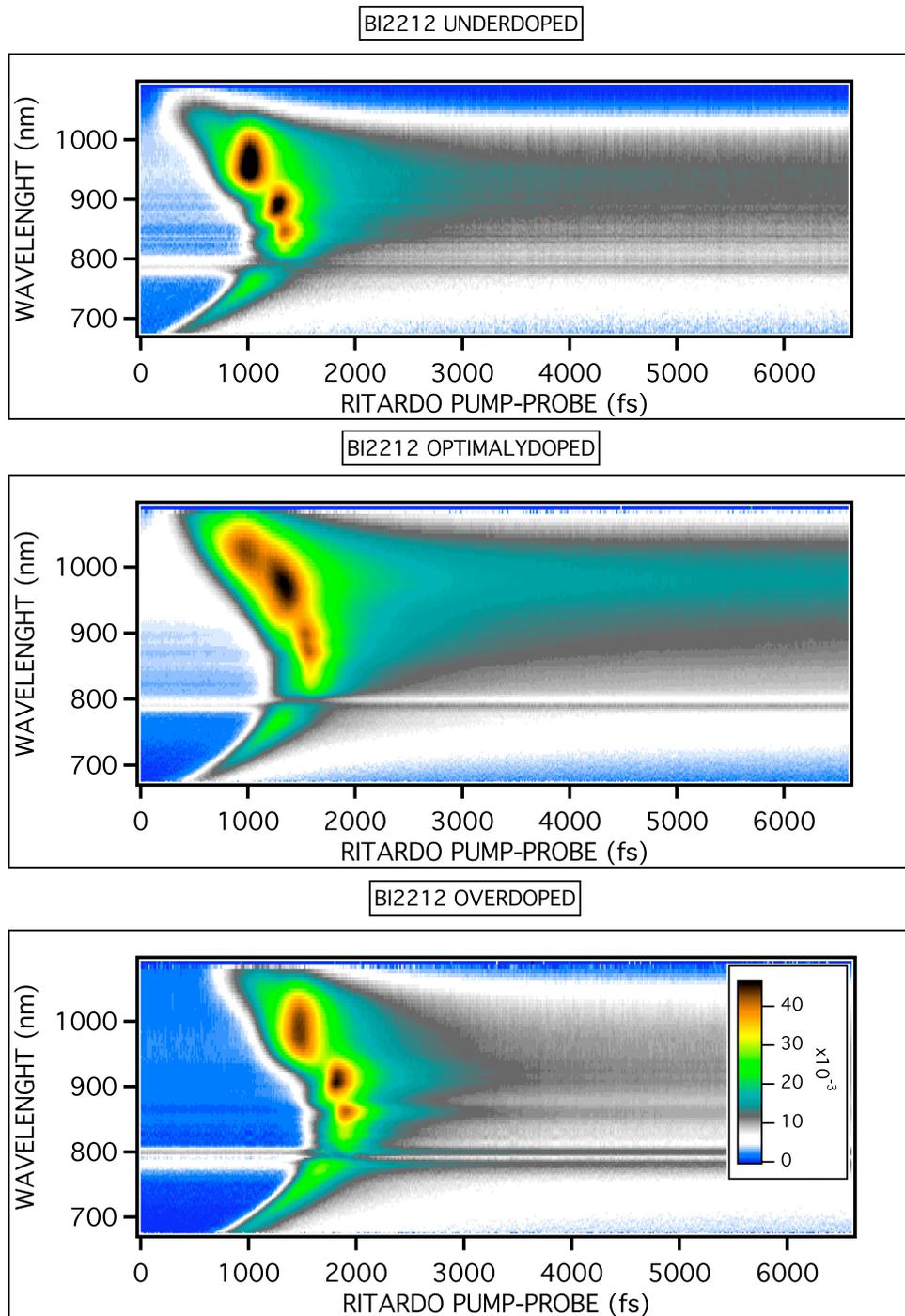


Figura 4.5: Variazione di riflettività al variare del ritardo tra pompa e probe per tutte le lunghezze d'onda dell'impulso di probe.

Presento ora una sezione di questi grafici, ovvero la variazione di riflettività per un particolare lunghezza d'onda al variare del delay tra pompa e probe.

In figura 4.6 riporto la variazione di riflettività per il Bi2212 underdoped per la lunghezza d'onda di probe di 870 nm.

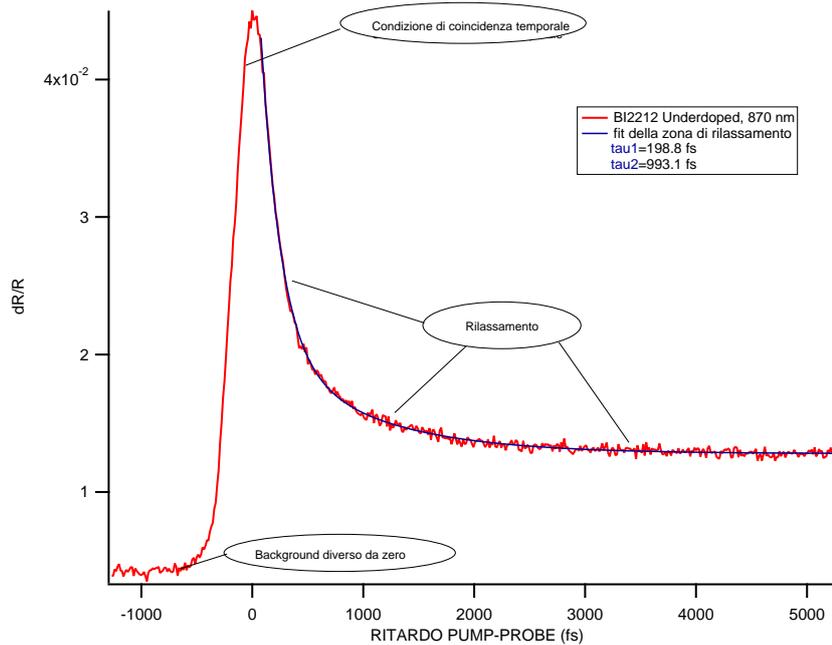


Figura 4.6: Variazione di riflettività per il Bi2212 Underdoped ($\lambda = 870 \text{ nm}$). Il picco della variazione si ha in condizione di coincidenza temporale. Il rumore della misura non è eccessivamente alto, attorno a $5 \cdot 10^{-4}$.

A ritardi negativi (pompa anticipata) si nota un fondo costante diverso da zero, dovuto al riscaldamento medio del campione. Le dinamiche di rilassamento dovuto allo scattering elettrone-elettrone e elettrone-fonone si esauriscono prima dell'impulso successivo. Questo non avviene invece per la componente termica acquistata dal reticolo in quanto il ΔT indotto nel reticolo deriva da fenomeni di diffusione del calore che non si esauriscono prima dell'impulso successivo (da qui il fondo costante diverso da zero prima che avvenga il riscaldamento impulsivo).

In condizione di coincidenza temporale abbiamo la crescita della variazione di riflettività, che come ci aspettiamo ha una forma gaussiana (il rise time ricalca il profilo temporale dell'impulso) che viene convoluta con una funzione a doppia esponenziale (risposta del materiale).

Per estrarre le informazioni sulle dinamiche di rilassamento del sistema, abbiamo fittato i dati nella zona di rilassamento con una doppia esponenziale (linea blu in figura 4.6). A $\lambda = 870$ nm per il Bi2212 underdoped si ottiene $\tau_\alpha = 198.8$ fs e $\tau_\beta = 993.1$ fs. Riporto di seguito per ciascuno dei tre campioni alcune sezioni dei risultati ottenuti e un grafico della zona di rilassamento in scala semilogaritmica (fig. 4.7, 4.8 e 4.9).

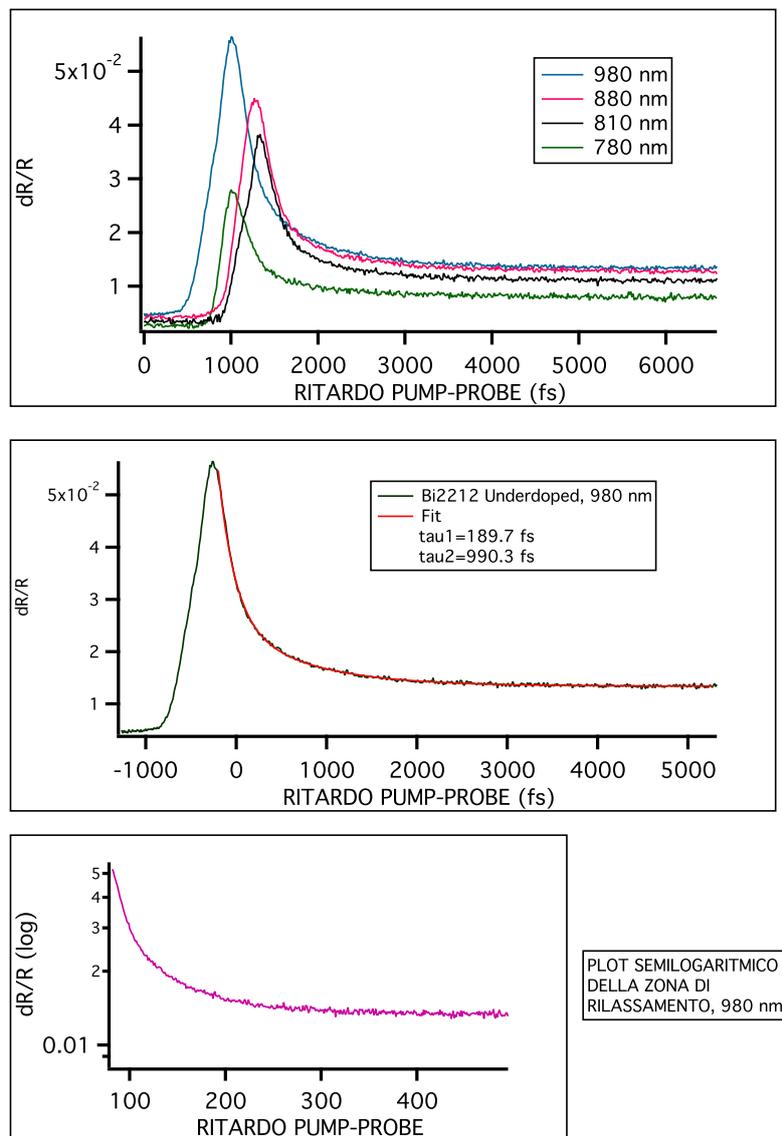


Figura 4.7: Bi2212 Underdoped

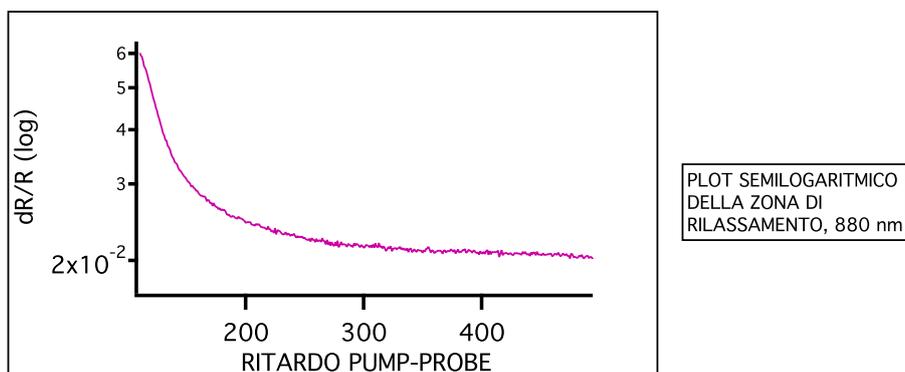
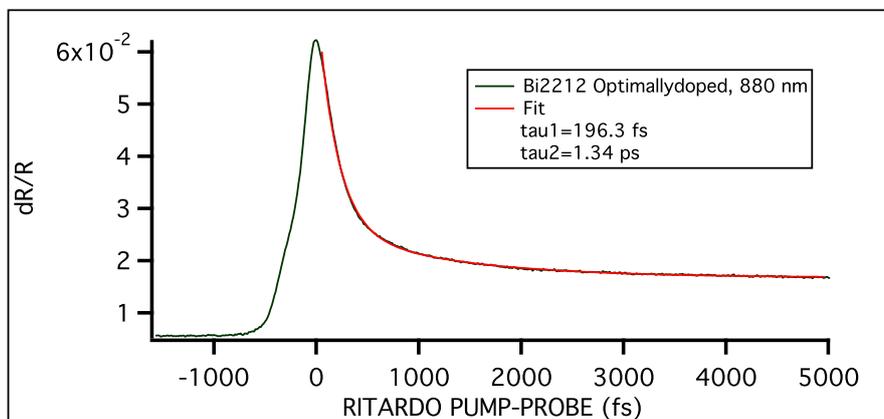
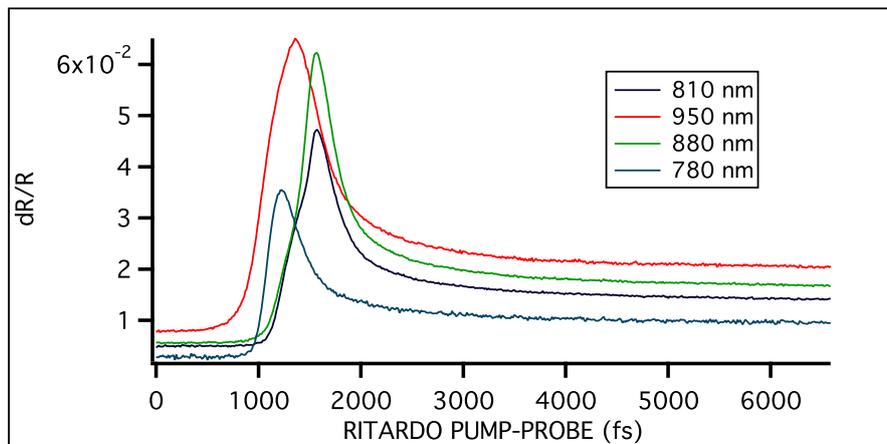


Figura 4.8: Bi2212 Optimallydoped

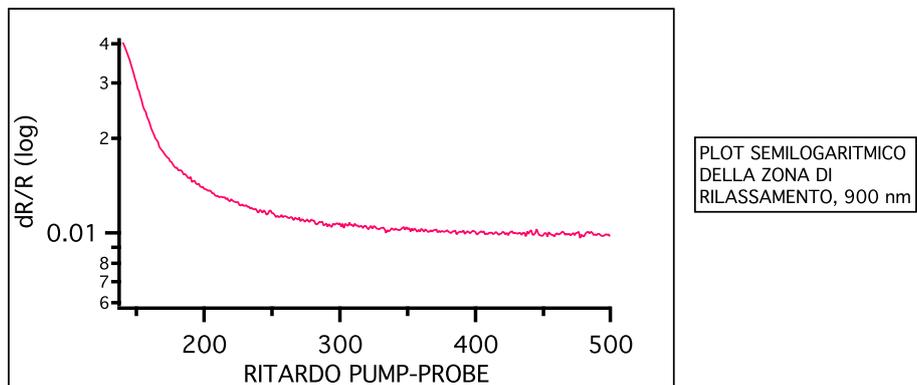
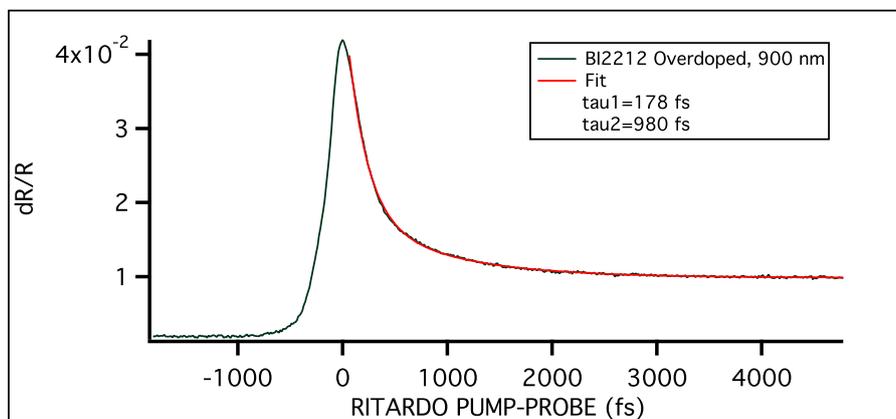
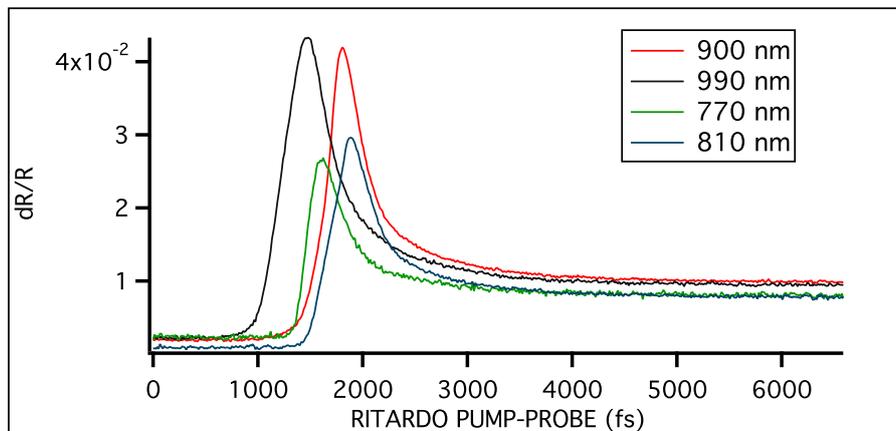


Figura 4.9: Bi2212 Overdoped

Riporto in figura 4.10 i valori dei tempi di rilassamento ottenuti dal fit.

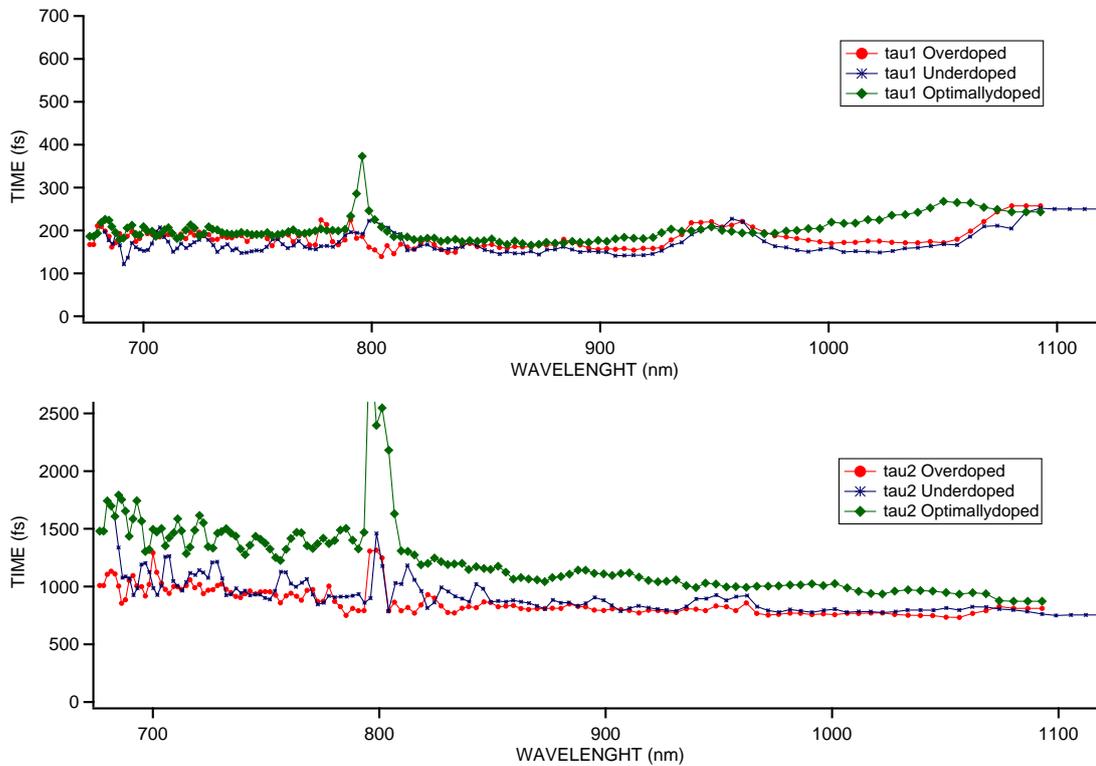


Figura 4.10: Tempi di rilassamento dei tre campioni ottenuti con una funzione a doppia esponenziale.

Per ottenere i tempi di decadimento su tutto lo spettro misurato abbiamo sviluppato una procedura in cui all'interno di un ciclo è inserita la funzione a doppia esponenziale. In questo modo posso fittare in un unico procedimento tutte le lunghezze d'onda del probe.

Bisogna comunque sottolineare che nelle zone dello spettro in cui l'impulso presenta un profilo a doppia gaussiana (intorno a 900 nm e 1000 nm) i fit sono stati fatti manualmente in quanto il picco da cui comincia il rilassamento varia. Lo stesso discorso vale anche per la componente a 800 nm, i cui decay sono stati ricavati dalle misure realizzate in un intervallo che varia dai $-5800 \mu\text{m}$ ai $-5400 \mu\text{m}$ di slitta (figura 4.11).

Come anticipato nella sezione 3.4 la componente ad 800 nm è infatti molto ritardata rispetto al resto dell'impulso di probe.

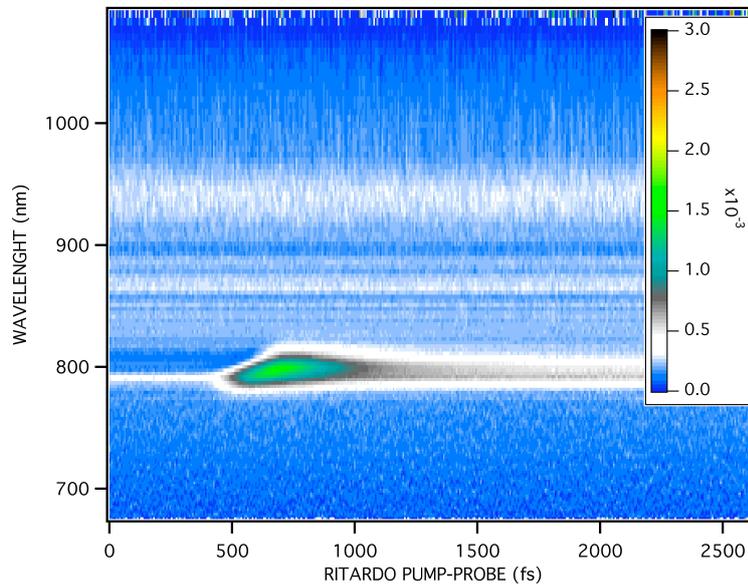


Figura 4.11: Scan a 800 nm del Bi2212 Optimallydoped.

Dai risultati è evidente la presenza di due tempi di rilassamento ben distinti, il primo nell'ordine di 150-200 fs e il secondo nell'ordine di 10-15 ps. Sia il rilassamento veloce che quello lento presentano un andamento omogeneo su tutto lo spettro.

Tutti e tre i campioni presentano lo stesso comportamento nel primo rilassamento veloce. Nel secondo rilassamento i campioni underdoped e overdoped presentano lo stesso comportamento mentre l'optimallydoped rilassa un po' più lentamente.

I valori medi per il primo rilassamento sono:

- Bi2212 underdoped ~ 201 fs
- Bi2212 optimallydoped ~ 210 fs
- Bi2212 overdoped ~ 205 fs

I valori medi per il secondo rilassamento sono:

- Bi2212 underdoped ~ 1 ps
- Bi2212 optimallydoped ~ 1.3 ps
- Bi2212 overdoped ~ 0.9 ps

Questi dati sono in accordo con quelli forniti dalla letteratura [10], [14], [20].

Come anticipato nella sezione 2.2.3 attraverso una misura di riflettività risolta in tempo è possibile ottenere direttamente una stima della costante di interazione elettrone-fonone λ .

Dal momento che

$$\tau = \frac{\pi k_B T_{el}}{3\hbar\lambda\langle\Omega^2\rangle}$$

conoscendo il τ l'unico valore da ricavare per ottenere $\lambda\langle\Omega^2\rangle$ è il valore di T_{el} . L'aumento della temperatura elettronica si può stimare come

$$\Delta T_{el} = \frac{\phi}{C_{el}}$$

dove C_{el} è il calore specifico elettronico che vale $0.033 \frac{J}{cm^3 K}$ ad una temperatura di 300 K [7]. La fluena di pompa ϕ vale nel nostro caso $130 \frac{\mu J}{cm^2}$. Con questi valori si ottiene che l'aumento della temperatura elettronica è di 250 K, quindi gli elettroni in seguito all'eccitazione di pompa hanno una temperatura di 300 K+250 K=550 K. Con questo valore di T_{el} si ottiene:

$$\lambda\langle\Omega^2\rangle = 160 \pm 50 \text{ meV}^2$$

Questo valore è confrontabile con quelli presenti in letteratura [20].

La presenza di una seconda dinamica di rilassamento fa pensare ad una λ anisotropa per il Bi2212.

Per quanto riguarda la seconda dinamica di rilassamento, essa è stata osservata in precedenti lavori [14] con valori confrontabili con quelli da noi ottenuti.

Come già osservato nella sezione 2.2 questa doppia dinamica di rilassamento può essere interpretata da un modello a tre temperature, per il quale esistono due popolazioni di fononi.

L'eccitazione di pompa scalda impulsivamente il gas di elettroni. Questi termalizzano e raggiungono una temperatura maggiore di quella del reticolo ($T_{el} > T_{latt}$), in un processo che avviene in pochi fs.

Gli elettroni scaldati dall'eccitazione di pompa cedono energia ad un prima famiglia di fononi più fortemente accoppiati con il sistema elettronico, in un tempo caratteristico $\tau_\alpha \sim 200 fs$. Questo gruppo di fononi acquista allora una temperatura $T_p > T_{latt}$.

Quando elettroni e fononi (fononi caldi) raggiungono la stessa temperatura

dissipano la loro energia e la cedono ai rimanenti fononi (fononi freddi). In questo processo le energie scambiate sono molto minori e il tempo tipico in cui ciò avviene è $\tau_\beta \sim 2ps$. La figura 4.12 schematizza questo doppio processo di rilassamento.

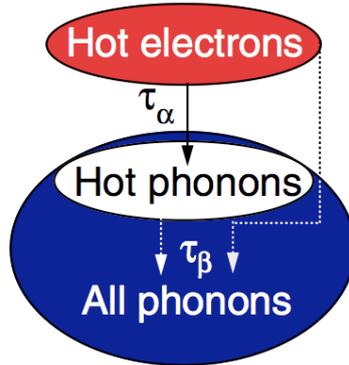


Figura 4.12: Schema del trasferimento di energia durante il processo di rilassamento [14].

Questo secondo tempo di rilassamento più lento non si osserva nei metalli normali, ma è stato osservato anche in materiali fortemente anisotropi come la grafite.

In figura 4.13 riportiamo la dinamica di decadimento misurata in condizioni analoghe su un campione di grafite HOPG (highly oriented pyrolytic graphite).

Notiamo per la grafite un comportamento simile a quello dei tre campioni di Bi2212.

Nel secondo tempo di rilassamento è evidente che nel lontano infrarosso (da 900 nm in poi) la tendenza della grafite è quella di rilassare più lentamente.

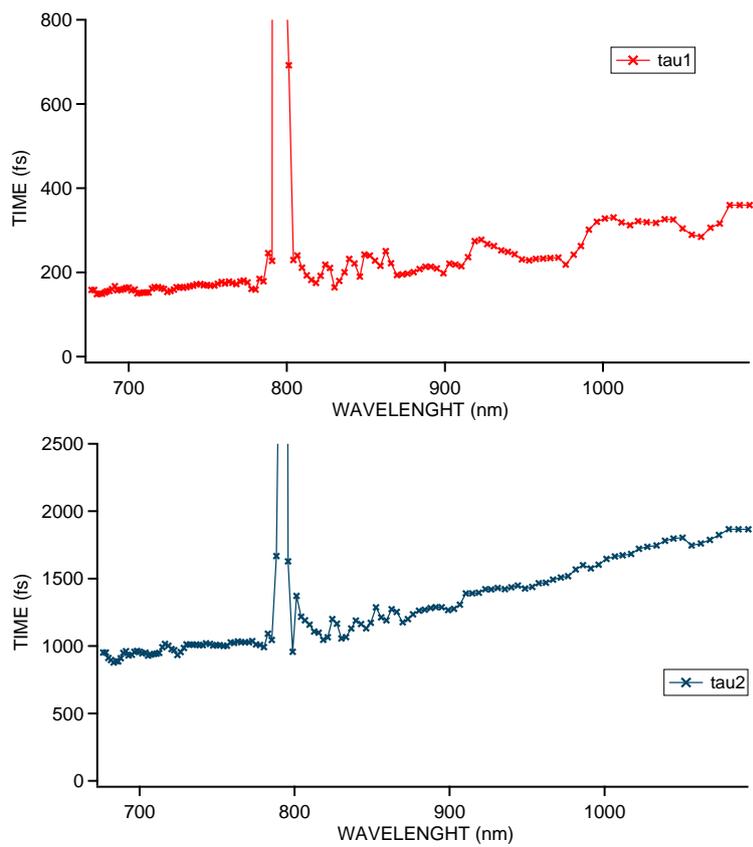


Figura 4.13: Tempi di rilassamento misurati con le stesse modalità dei precedenti su un campione di grafite.

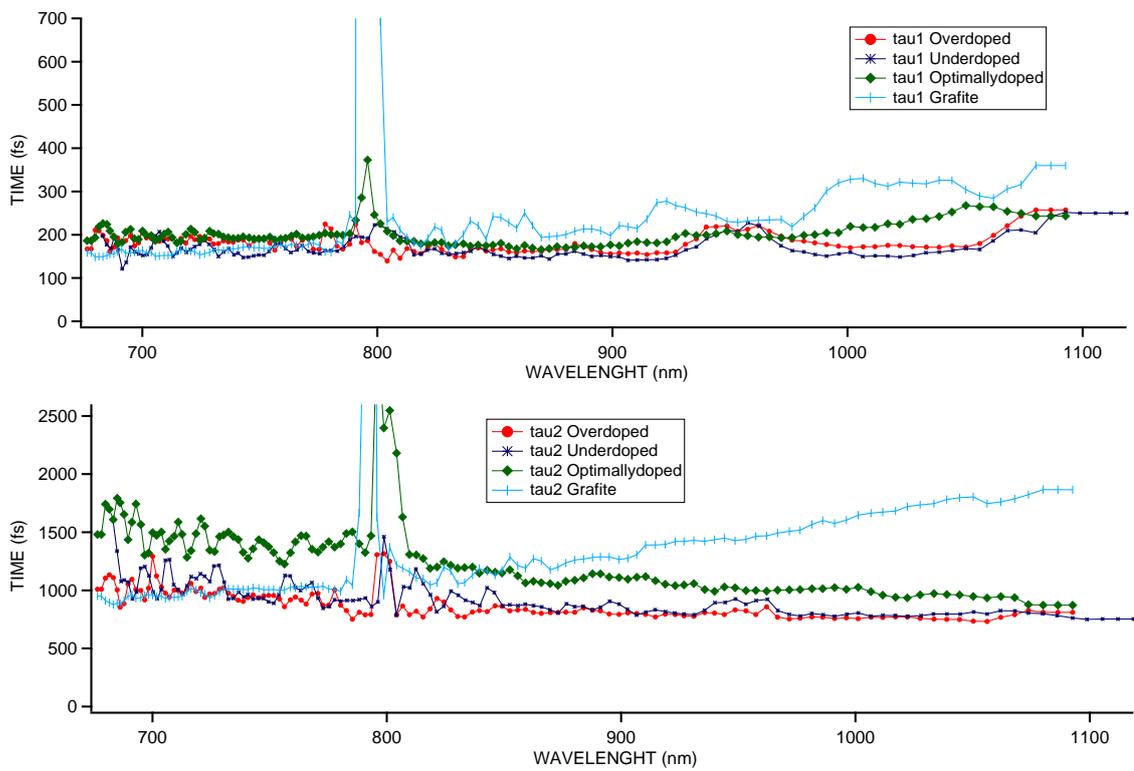


Figura 4.14: Confronto dei tempi di rilassamento dei tre campioni di Bi2212 con la grafite.

Capitolo 5

Conclusioni

In conclusione in questo lavoro di tesi si sono analizzate le dinamiche di rilassamento del superconduttore ad alta temperatura critica Bi2212 nello stato normale ($T \sim 300$), portato fuori equilibrio in seguito all'eccitazione fotoindotta mediante impulsi laser ultracorti.

Questa esperienza è stata svolta attraverso la tecnica di spettroscopia ottica risolta in tempo pump-probe, in cui come fascio di probe si è utilizzato un supercontinuo in modo da indagare la variazione di riflettività in un ampio intervallo spettrale (650 nm-1050 nm).

Si è evidenziata l'esistenza di due dinamiche di rilassamento, una veloce e un'altra più lenta. Questo doppio rilassamento può essere dovuto al fatto che solo una piccola parte di fononi è fortemente accoppiata con gli elettroni e che lo scambio di energie nel Bi2212 è un processo anisotropo.

Si è inoltre misurata una riflettività statica del Bi2212 attorno al 8%.

La prospettiva futura è quella di caratterizzare temporalmente il supercontinuo in maniera più precisa, in modo da conoscere la lunghezza temporale di tutte le lunghezze d'onda di probe. In questo modo è possibile effettuare una stima ancora più precisa dei due tempi di rilassamento, in particolare del primo, il quale risente maggiormente dell'impulso di probe.

Questi risultati saranno un importante termine di confronto quando verranno misurate le dinamiche di rilassamento del Bi2212 in stato superconduttivo in quanto lo studio dell'accoppiamento elettrone-fonone sta alla base dell'analisi delle differenze tra i superconduttori ad alta temperatura critica e i superconduttori tradizionali (BCS).

Bibliografia

- [1] J. M. Ziman, *Theory of Solids*, Cambridge university press.
- [2] M. Tinkham, *Introduction to superconductivity*, McGraw-Hill Inc.
- [3] S. Fujita, S. Godoy, *Theory of hight temperature superconductivity*, Kluwer academic publishers.
- [4] C. Giannetti et al., *Non thermal eletronic phase transistion in underdoped BscCo*, submitted to Phys. Rev. B, PRL 14-10-2008.
- [5] J. Hwang et al., *Marginal Fermi liquid analysis of 300 K reflectance of BscCo*, PRL, 25-03-2004.
- [6] F. Bassani, U. Grassano, *Fisica dello stato solido*, Bollati Boringhieri.
- [7] Federico Cilento, *Dinamiche elettroniche fotoindotte in superconduttori ad alta temperatura critica*, Università Cattolica del Sacro Cuore, Brescia 2007 (tesi di laurea).
- [8] A. L. Dobbryakov, *Ultrafast relation in YBCO on the femtosecond scale*, Solid State Communications, 2000.
- [9] A. Damascelli et al., *Angle-resolved photoemission studies of the cuprate superconductors*, Reviews of modern physics, vol. 75, pag 487, 2003.
- [10] Philip B. Allen, *Theory of thermal relaxation of electrons in metals*, PRL, 20-09-1987.
- [11] S. D. Brorson et al., *Femtosecond room-temperature measurement of the electron-phonon coupling constant λ in metallic superconductors*, PRL, 30-06-1990.
- [12] G. Fowles, *Introduction to Modern Optics*, Dover publications.

- [13] Giacomo Coslovich, *Dinamiche di non-equilibrio fotoindotte e possibili transizioni di fase in superconduttori ad alta temperatura critica*, Università degli studi di Trieste, Trieste 2006 (tesi di laurea).
- [14] L. Perfetti, *Ultrafast electron relaxation in superconducting Bi2212 by time-resolved photoelectron spectroscopy*, PRL, 9-11-2007.
- [15] D. Van der Marel, *Optical and thermodynamic properties of the high-temperature superconductor Hg1201*, PRL, 14-11-2008.
- [16] T. Timusk, *Electrodynamics of high-temperature superconductors*, Rev. Mod. Phys., Vol. 77, Aprile 2008.
- [17] H. Molegraaf, D. Van der Marel, *Superconductivity-Induced transfer of In-Plane Spectral Weight in Bi2212*, Science, Vol. 295, 22-03-2002.
- [18] A. Kuzmenko, *Guide to refFIT*, <http://optics.unige.ch/alexey/refFIT.html> (aggiornamento del 13.10.2008).
- [19] C. Giannetti, *Dynamics of non-equilibrium states in solids induced by ultrashort coherent pulses*, Ph. D. Thesis, Brescia, 2004.
- [20] S. D. Brorson et al., *Femtosecond thermomodulation study of HTSC*, Solid State Communication, Vol. 74, No. 12, 1990.