

UNIVERSITÀ DEGLI STUDI DI TRIESTE

FACOLTÀ DI SCIENZE MATEMATICHE, FISICHE E NATURALI

CORSO DI LAUREA SPECIALISTICA IN FISICA



**Dinamiche di non-equilibrio
foto-indotte e possibili effetti di
transizioni di fase in superconduttori
ad alta temperatura critica**

TESI DI LAUREA

Giacomo Coslovich

MATRICOLA N. 62300039

Relatore: Prof. Fulvio Parmigiani

Correlatore: Dott. Claudio Giannetti

ANNO ACCADEMICO 2005/2006

Indice

Indice	I
1 Introduzione	1
1.1 Quadro generale	1
1.2 Obiettivi	3
2 Stato dell'arte	4
2.1 Superconduttività ad alta temperatura critica	4
2.2 Proprietà ottiche in condizioni d'equilibrio	7
2.3 Misure ottiche risolte in tempo	11
2.3.1 Metalli	12
2.3.2 Superconduttori	15
3 Caratterizzazione dei campioni	20
3.1 Descrizione del cristallo di Bi2212	21
3.2 $\theta - 2\theta$ e rocking curves dei campioni	23
3.2.1 Descrizione delle tecniche di misura	23
3.2.2 Risultati	26
3.3 Suscettività magnetica AC e misura delle temperature critiche dei campioni	30
3.3.1 Descrizione della tecnica di misura	30

3.3.2	Risultati	33
4	Apparato sperimentale	35
4.1	La tecnica pump-probe	35
4.2	Descrizione dell'apparato sperimentale	36
4.3	Il cavity dumper	40
4.4	Il criostato	42
4.5	Il modulatore foto-elastico	44
4.6	Coincidenza e caratterizzazione degli impulsi	47
5	Risultati	50
5.1	Misure pump-probe a basse fluenze	51
5.2	Misure pump-probe e di linearità in funzione dell'intensità dell'eccitazione	56
6	Discussione	64
6.1	Effetti di riscaldamento	64
6.2	Possibili effetti di transizioni di fase	67
7	Conclusione	73
	Bibliografia	75
	Ringraziamenti	78

Capitolo 1

Introduzione

1.1 Quadro generale

La comprensione dei processi superconduttivi ad alta temperatura è uno dei problemi aperti della fisica moderna. Nonostante gli sforzi, sia in campo sperimentale sia teorico, dopo vent'anni dalla scoperta di tale fenomeno nei composti a base di ossidi di rame (cuprati), manca una teoria che spieghi in modo coerente e completo le proprietà fondamentali di tali materiali. La teoria di Bardeen-Cooper-Schrieffer (BCS), che ha delucidato la fisica dei superconduttori convenzionali, non spiega il meccanismo superconduttivo nei cuprati.

Per giungere ad una comprensione del fenomeno è di fondamentale importanza analizzare i processi di interazione elettrone-fonone e elettrone-elettrone. Queste interazioni, infatti, potrebbero essere responsabili della formazione delle coppie di Cooper, ovvero coppie di elettroni che condensano in uno stato bosonico responsabile dei processi di trasporto di carica in stato superconduttivo. Nella teoria BCS tale accoppiamento avviene grazie all'interazione elettrone-fonone. Questo non sembra essere il caso dei

cuprati, in cui l'origine della formazione e condensazione delle coppie di Cooper è tuttora sconosciuto. Tuttavia, già nello stato normale le interazioni elettrone-elettrone giocano un ruolo fondamentale nel determinare la struttura elettronica del sistema. Quest'ultima presenta caratteristiche di forte correlazione elettronica e non può essere descritta da una teoria a bande a elettroni non-interagenti.

Gli effetti di correlazione elettronica così come la struttura a bande dello stato superconduttivo sono stati indagati intensivamente negli ultimi anni. In particolare, tecniche di spettroscopia di foto-emissione risolta in angolo (ARPES) e tecniche di microscopia ad effetto tunnel (STM) sono stati i principali strumenti di indagine utilizzati. Questi studi hanno permesso di evidenziare la simmetria d-wave della gap superconduttiva, la presenza di una pseudo-gap a temperature maggiori della temperatura critica (T_c). [1]

Negli ultimi anni la disponibilità di sorgenti in grado di generare impulsi ultra-corti di luce coerente ha reso possibile lo studio delle proprietà ottiche in condizioni di non-equilibrio, su scale di tempo dell'ordine dei femtosecondi.

La presente tesi si colloca in questo contesto con uno studio della variazione di riflettività in seguito a una perturbazione, non selettiva, indotta con un impulso laser sul superconduttore $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_1\text{Cu}_2\text{O}_{8+\delta}$ (Bi2212) leggermente 'sottodrogato', con $T_c \cong 82 \text{ K}$. L'eccitazione, indotta da fotoni con una energia di 1,5 eV, porta il sistema fuori dalla condizione di equilibrio. A seconda dell'intensità di questa eccitazione, le dinamiche osservate passano da un regime debolmente perturbato ad uno fortemente eccitato, in cui sono presenti segnali di una possibile transizione di fase dallo stato superconduttivo allo stato normale indotta dai fotoni.

In letteratura il regime perturbativo è stato largamente studiato per mez-

zo di sorgenti ad alto 'repetition rate'¹ che permettono di ottenere un buon rapporto segnale/rumore anche in condizioni di bassa energia per impulso [2, 3, 4, 5] . Tuttavia, esistono pochi lavori nel regime fortemente eccitato a causa degli effetti di riscaldamento medio indotti da queste sorgenti.

In questo lavoro sfruttiamo le caratteristiche di una sorgente a 'repetition rate' variabile per studiare l'evoluzione della dinamica di rilassamento del sistema da regimi perturbativi a regimi non perturbativi.

1.2 Obiettivi

Gli obiettivi del presente lavoro di tesi sono

- caratterizzazione della dinamica del sistema in condizioni di debole perturbazione, distinguendo il comportamento nelle tre fasi che caratterizzano un superconduttore ad alta temperatura critica (stato normale, stato di pseudo-gap, stato normale)
- dipendenza della dinamica dall'intensità dell'eccitazione, distinguendo i casi in cui il sistema è debolmente o fortemente perturbato
- studio della dinamica in condizioni di forte perturbazione, individuando i possibili effetti di transizioni di fase foto-indotti.

¹frequenza di ripetizione degli impulsi

Capitolo 2

Stato dell'arte

2.1 Superconduttività ad alta temperatura critica

La scoperta della superconduttività a ~ 30 K nel composto ceramico La-Ba-Cu-O (dovuta a Bednorz e Müller nel 1986) e la successiva scoperta di altri cuprati superconduttori, con T_c ben oltre la soglia dell'ebollizione dell'azoto (77 K), ha segnato l'inizio di una nuova era nel campo della fisica della materia condensata.

La ricerca di un modello che potesse spiegare la natura dello stato superconduttivo in questi sistemi rappresenta uno dei maggiori impegni per la fisica degli ultimi vent'anni. Tale ricerca ha spinto lo sviluppo e il perfezionamento di molte tecniche sperimentali usate per la crescita e la caratterizzazione di mono-cristalli e film sottili e per lo studio delle proprietà elettroniche dei solidi (principalmente ARPES e STM). Allo stesso modo nel campo della fisica teorica lo studio degli 'High- T_c ' ha portato a una maggiore comprensione dei sistemi a forte correlazione elettronica.

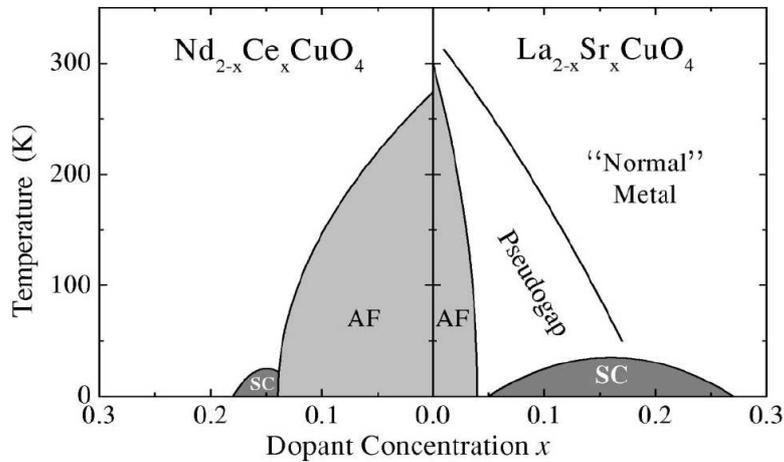


FIGURA 2.1: Immagine da [1]. Diagramma della fasi per superconduttori high- T_c drogati con elettroni (a sinistra) e con buche (a destra). Sono evidenziate le regioni anti-ferromagnetiche AF e superconduttive SC.

A causa della forte correlazione elettrone-elettrone, le proprietà di tali materiali, sia in fase superconduttiva che in quella normale, non possono essere spiegate con la teoria a bande convenzionale o con la teoria del liquido di Fermi, basate su una descrizione a particella singola. La superconduttività è quindi solo un'aspetto di un complesso diagramma delle fasi che va compreso "in-toto".

Il comune denominatore dei composti high- T_c è la struttura a 'layer', caratterizzata da uno o più piani Cu-O nella cella elementare (vedi sezione 3.1), e un diagramma di fase universale nel piano (x,T) dove x (il 'doping') indica il numero di buche (o elettroni) introdotte nel piano Cu-O. Tale diagramma di fase è illustrato schematicamente in figura 2.1. In questa tesi considereremo solo il caso dei superconduttori drogati con buche ed in particolare faremo riferimento al composto Bi2212.

La teoria a bande a elettroni non-interagenti prevede uno stato metallico per il composto non drogato ($x=0$) dato che il numero di elettroni nella banda

di conduzione, composta dagli orbitali $2p^6$ dell'O e $3d^9$ del Cu, è dispari.

Il composto non drogato invece ($x=0$) è un isolante di 'Charge-Transfer' con proprietà anti-ferromagnetiche. Tale comportamento è da attribuire agli effetti di correlazione elettronica ed è rappresentato dal modello di Mott-Hubbard [1] .

Sebbene il meccanismo alla base della superconduttività ad alta temperatura non sia tuttora compreso, è chiaro che il punto di partenza per comprenderne le caratteristiche elettroniche è quello dell'isolante di 'Charge-Transfer'. [6].

Con l'introduzione del doping la fase anti-ferromagnetica scompare via via lasciando il posto a una fase conduttiva anisotropa (il sistema è conduttivo solo lungo le direzioni parallele ai piani Cu-O).

Raggiunto un doping critico la fase superconduttiva diventa accessibile con una T_c crescente col doping fino a raggiungere un massimo in corrispondenza del drogaggio ottimale (a tale drogaggio il materiale viene detto 'optimally-doped').

Le simmetria delle coppie di Cooper è di tipo 'd-wave', il che si traduce in una gap superconduttiva che non è isotropa nello spazio reciproco [1, 7]. In particolare, la direzione nodale (quella lungo cui la gap è nulla) corrisponde a una direzione del momento dell'elettrone orientata nello spazio reale a 45° rispetto alle direzioni del legame Cu-O.

Nella zona 'under-doped', al di sopra della T_c , tale gap persiste nello spettro delle eccitazioni di bassa energia ($\sim 20-100meV$) anche se il sistema non è più superconduttivo [1]. Ciò sembra indicare una forma di 'pairing' tra gli elettroni anche nello stato di pseudogap. Sull'interpretazione di questo fenomeno il dibattito è ancora aperto.

Il confine tra la fase 'pseudogap' e quella del metallo 'normale', denotato

dalla temperatura T^* , non è ben definito e varia a seconda della tecnica adottata e dalla definizione di pseudo-gap (fase di pseudo-gap) [8].

La regione a doping ottimale e a temperature maggiori di T^* presenta, in realtà, diverse anomalie rispetto ai metalli normali (come per esempio una resistività nel piano Cu-O lineare con T) e viene talvolta indicata come 'strange metal'.

2.2 Proprietà ottiche in condizioni d'equilibrio

Lo studio delle proprietà ottiche dei superconduttori è un campo estremamente vasto. [8]

Tramite una misura di spettroscopia ottica è possibile ottenere la parte reale e immaginaria della funzione dielettrica del materiale

$$\epsilon(\omega) = \epsilon_1(\omega) + i\epsilon_2(\omega) = \epsilon_1(\omega) + i\frac{4\pi\sigma(\omega)}{\omega} \quad (2.1)$$

dove $\sigma(\omega)$ è la conducibilità ottica alla frequenza ω della radiazione elettromagnetica, mentre le unità di misura adottate sono quelle del sistema doppio-simmetrico di Gauss. La $\epsilon_1(\omega)$ contiene informazioni riguardanti la velocità di fase dell'onda elettromagnetica nel mezzo, mentre la $\epsilon_2(\omega)$ riguarda gli effetti dissipativi ed è infatti correlata alla conducibilità elettrica.

Queste quantità si possono ottenere mediante differenti metodi sperimentali, quali un'analisi della riflettività su uno spettro di frequenze, sufficientemente ampio, tramite le equazioni di Kramers-Kronig [9], una misura congiunta in riflessione e trasmissione o una misura di ellissometria. [8]

Il range spettrale d'interesse per i superconduttori ad alta temperatura

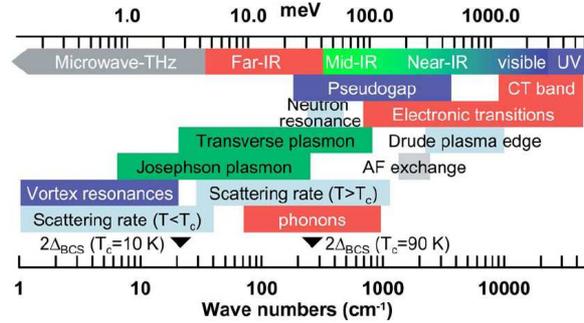


FIGURA 2.2: Immagine da [8]. Spettro dei fenomeni fisici che è possibile studiare in un superconduttore ad alta temperatura alle varie frequenze della radiazione elettromagnetica.

va dal THz fino al visibile. In figura 2.2 è riportato uno schema dei vari fenomeni fisici osservabili mediante spettroscopia ottica.

In un superconduttore la conducibilità elettrica DC è infinita, il che si può rappresentare con una 'delta' a frequenza zero nello spettro della conducibilità. Infatti dalle equazioni di London per un modello a due fluidi si ottiene la seguente relazione [8]

$$\sigma(\omega) = \frac{\pi}{2} \left(\frac{n_s e^2}{m^*} \delta(0) \right) + \sigma_{reg} \quad (2.2)$$

dove n_s è la densità di elettroni superconduttori e σ_{reg} il contributo degli elettroni normali che può essere ricondotto ad un modello di Drude-Lorentz.

La presenza di una 'delta' a frequenza zero nella conducibilità ottica ha conseguenze sullo spettro anche a frequenze finite. Ciò è dovuto alla regola di somma a cui obbedisce la funzione $\sigma(\omega)$ [10, 8]. L'integrale in frequenza di quest'ultima (peso spettrale) è infatti legato alla densità totale di elettroni interagenti con l'onda elettromagnetica,

$$8 \int_0^\infty \sigma_1(\omega) d\omega = \frac{4\pi n e^2}{m_e} \quad (2.3)$$

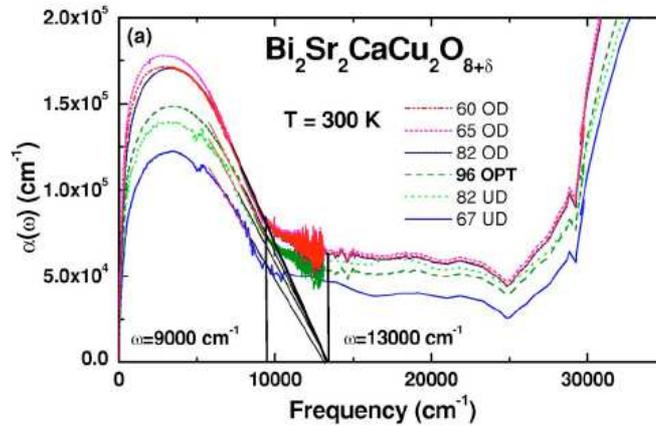


FIGURA 2.3: Immagine da [14]. Spettro d'assorbimento della radiazione elettromagnetica per vari campioni di Bi2212. $1 \text{ eV} \rightarrow 8065 \text{ cm}^{-1}$

Considerando, quindi, il sistema prima e dopo la transizione superconduttiva si assiste ad uno spostamento di peso spettrale dalla frequenza zero a frequenze finite. Tale effetto è stato osservato sperimentalmente da diversi gruppi [11, 12, 13]. In particolare, anche a un'energia di 1,5 eV, tipica degli esperimenti da noi condotti e relativamente alta rispetto alle energie tipiche della gap superconduttiva ($\sim 10 \text{ meV}$), tale effetto è misurabile. Queste misure sono molto studiate dato che possono fornire delle indicazioni sul meccanismo responsabile del guadagno energetico che si verifica nella transizione dalla fase normale alla fase superconduttiva..

Come detto, gli esperimenti condotti nel presente lavoro consistono nello studio delle variazioni di riflettività in condizioni di non-equilibrio. È utile quindi disporre di uno studio sistematico della riflettività in condizioni di equilibrio.

Lo spettro del coefficiente d'assorbimento è illustrato in figura 2.3. A basse frequenze (fino a $\sim 1 \text{ eV}$) lo spettro è dominato dalle transizioni intra-

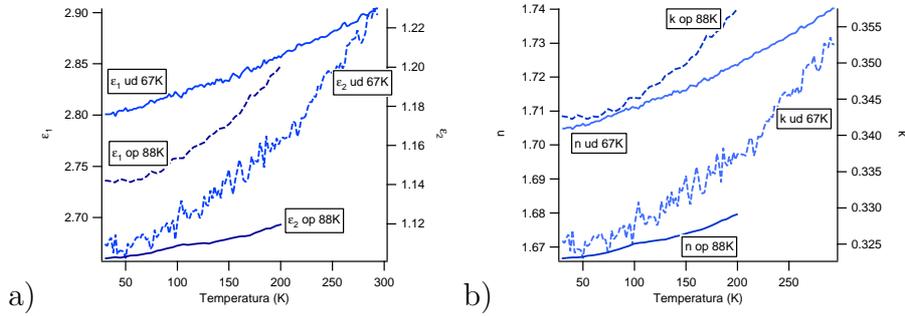


FIGURA 2.4: Parte reale (sinistra) e parte immaginaria (destra) della funzione dielettrica (a) e dell'indice di rifrazione (b) per campioni underdoped e optimally-doped di Bi2212. Dati da [12]

banda, rappresentabili dal modello di Drude-Lorentz. All'energia di 1,5 eV invece, i fotoni innescano transizioni inter-banda e interpretabili come transizioni di 'charge-transfer' tra le bande O(2p) e Cu(3d) [14, 11]. Tali transizioni ottiche non appaiono nettamente nello spettro a causa della significativa ibridizzazione di queste bande.

Uno studio dettagliato della dipendenza delle costanti ottiche in funzione della temperatura è stato riportato in [12]. In figura 2.4 riportiamo la dipendenza di ϵ_1 e ϵ_2 dalla temperatura a energie dei fotoni di 1,5 eV.

In questo caso si nota un andamento di ϵ_1 e ϵ_2 proporzionale a T^2 spiegabile, quantitativamente, usando il modello di Hubbard [15]. Da tali dati abbiamo estrapolato la parte reale e immaginaria dell'indice di rifrazione usando la relazione,

$$n^2 - k^2 = \epsilon_1 \quad (2.4)$$

$$2nk = \epsilon_2 \quad (2.5)$$

Il risultato è illustrato in figura 2.4b.

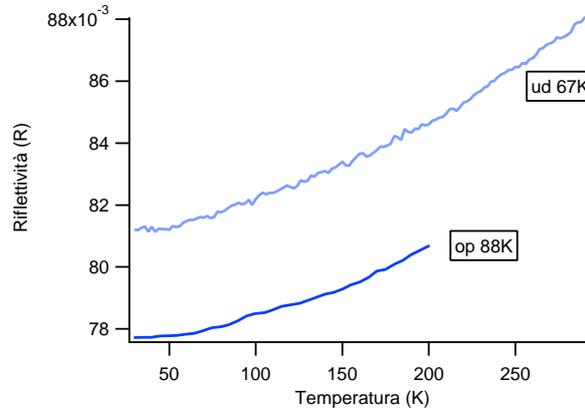


FIGURA 2.5: Riflettività in funzione della temperatura. Dati da [12]

Dalle relazioni di Fresnel ad incidenza normale (che rappresentano una buona approssimazione al nostro caso) la riflettività R risulta

$$R = \frac{(n - 1)^2 + k^2}{(n + 1)^2 + k^2} \quad (2.6)$$

Da essa abbiamo ottenuto i dati di figura 2.5. Questi risultati verranno usati come termine di paragone per le misure risolte in tempo.

2.3 Misure ottiche risolte in tempo

Per misure ottiche risolte in tempo intendiamo misure di variazione di riflettività o trasmittività a seguito di un'eccitazione foto-indotta.

Tali misure vengono svolte mediante la tecnica pump-probe, che verrà descritta più diffusamente nella sezione 4.1, in cui un fascio laser, detto di 'pump', crea la condizione di non-equilibrio nel sistema, mentre un secondo fascio, detto di 'probe', permette lo studio delle variazioni delle proprietà ottiche del materiale in funzione del suo ritardo temporale rispetto all'impulso d'eccitazione.

Mediante questa tecnica si possono studiare le dinamiche di rilassamento delle quasi-particelle¹ con risoluzioni temporali di ~ 150 fs fino a ritardi dell'ordine dei ns.

In questa sezione analizzeremo i modelli interpretativi dei fenomeni di non-equilibrio nei metalli (2.3.1) e nei superconduttori (2.3.2) in relazione alla tecnica pump-probe.

2.3.1 Metalli

L'approccio più semplice per rappresentare il sistema in una misura pump-probe è il modello a due temperature, proposto da Allen nel 1987 [16].

In tale modello si assume che l'effetto del 'pump' sia quello di scaldare impulsivamente il gas di elettroni a una temperatura maggiore di quella del reticolo, $T_e > T_r$, e che successivamente tale energia venga ceduta al reticolo per emissione di fononi. Analizzeremo criticamente la validità di tale presupposto in seguito, per il momento ci limitiamo a studiarne le conseguenze (si veda la figura 2.6 per una schematizzazione del processo di eccitazione e rilassamento).

Tale modello è rappresentato dalle seguenti equazioni differenziali (se si trascurano gli effetti di diffusione di calore) [17]

$$C_e(T_e) \frac{dT_e}{dt} = -g(T_e - T_r) \quad (2.7)$$

$$C_r \frac{dT_r}{dt} = g(T_e - T_r) \quad (2.8)$$

dove C_e e C_r sono i rispettivi calori specifici del gas di elettroni e del reticolo e g è una costante di accoppiamento che può essere messa in relazione

¹per quasi-particelle intendiamo le eccitazioni elementari di un solido che può essere descritto secondo la teoria del liquido di Fermi [9]

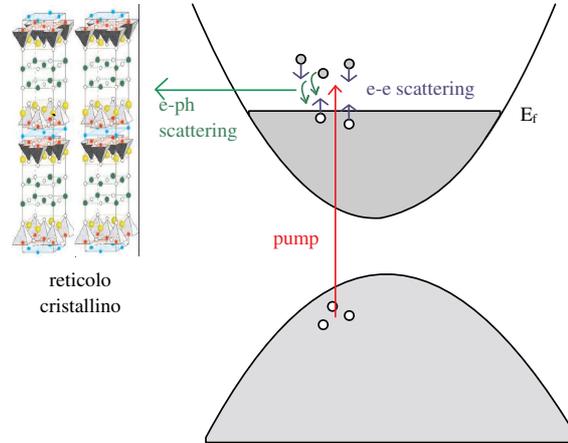


FIGURA 2.6: Descrizione schematica del processo di eccitazione e rilassamento in un metallo. Gli elettroni eccitati interagiscono (freccia blu) con gli elettroni in prossimità del livello di Fermi, aumentando quindi il numero di quasiparticelle ma mantenendo costante l'energia in eccesso. Tale energia viene ceduta al reticolo cristallino per mezzo dell'interazione elettrone-fonone (in verde).

alla costante di accoppiamento elettrone-fonone, λ , definita da Eliashberg nella generalizzazione della teoria BCS [18].

La relazione tra queste quantità è [19]

$$g = \frac{3\hbar\gamma\lambda\langle\omega^2\rangle}{\pi k_B} \quad (2.9)$$

dove γ è il coefficiente lineare del calore specifico elettronico ($C_e = \gamma T_e$) e $\langle\omega^2\rangle$ è il momento secondo della distribuzione delle frequenze dello spettro fononico.

Risolvendo il sistema delle equazioni 2.7 e 2.8 si ottiene un'equazione differenziale del secondo ordine che governa l'evoluzione temporale della temperatura elettronica T_e . Una buona approssimazione per il tempo di rilassamento, τ , è dato dalla formula di Allen [16]

$$\tau = \frac{\pi k_B T_e}{3\hbar\lambda\langle\omega^2\rangle} \quad (2.10)$$

Il modello a due temperature assume, inoltre, che la variazione della riflettività sia proporzionale alle variazioni di temperatura elettronica e del reticolo.

A titolo esplicativo si può considerare il caso del Cu e dell'Au, metalli in cui l'assorbimento della radiazione elettromagnetica nel visibile è causata principalmente dalle transizioni dalle bande d agli stati vicini all'energia di Fermi. L'energia minima di questa transizione vale rispettivamente 2.14 e 2.38 eV. Incidendo con radiazione elettromagnetica all'energia di ~ 2 eV non si osserva sostanzialmente alcuna transizione ottica, in quanto gli stati sotto il livello di Fermi sono occupati (a meno di una frazione esponenzialmente piccola). Tuttavia, se il gas di elettroni viene scaldato, il numero d'occupazione dei livelli sotto l'energia di Fermi diminuisce, per cui la probabilità che un fotone induca una transizione ottica aumenta, causando un aumento dell'assorbimento. Per quanto piccola, tale variazione delle proprietà ottiche è misurabile in una misura pump-probe.

Questo è solo uno dei fenomeni che possono avvenire a livello elettronico sotto effetto di un'eccitazione ottica. In altri termini, con una misura di variazione di riflettività si misura il numero di quasi-particelle in prossimità del livello di Fermi. Se la popolazione di elettroni fuori-equilibrio è termalizzata, si può assegnare una temperatura elettronica efficace T_e e vale l'assunzione $\Delta R \propto \Delta T_e$.

In secondo luogo, anche una variazione della temperatura del reticolo causa una variazione delle proprietà ottiche, in quanto, a seconda della posizione d'equilibrio degli ioni, le bande elettroniche e la posizione del livello di Fermi subiscono leggere modifiche. Ne è una dimostrazione il grafico riportato in figura 2.5.

Se le assunzioni del modello a due temperature sono verificate si osserverà una variazione di riflettività $\Delta R = \alpha\Delta T_e + \beta\Delta T_r$ e un tempo di rilassamento τ di $\Delta R(t)$ legato alla costante di accoppiamento elettrone-fonone λ .

Brorson et al. hanno svolto uno studio sistematico del τ su vari metalli, ottenendo una stima di λ a temperatura ambiente in sostanziale accordo con i risultati ottenuti con altre tecniche sperimentali [19].

Il modello a due temperature, nonostante la sua semplicità, fornisce quindi una corretta rappresentazione del problema.

Tuttavia è stato dimostrato che tale modello fallisce nel prevedere la corretta dipendenza del tempo di rilassamento dalla temperatura iniziale e dall'intensità del 'pump' (per esempio nel caso di Ag e Au) [20].

Questi risultati sono dovuti ad una distribuzione di non-equilibrio degli elettroni non descrivibile in termini di una distribuzione termica alla Fermi-Dirac. Ciò si verifica quando il tempo di scattering elettrone-fonone τ_{e-ph} (~ 100 fs) è sufficientemente rapido da non permettere una completa termalizzazione degli elettroni ($\tau_{e-e} \sim 10$ fs).

2.3.2 Superconduttori

Se si effettua una misura pump-probe su un superconduttore, in stato normale, la dinamica del sistema può essere rappresentata correttamente da un modello a due temperature. La situazione cambia drasticamente nel momento in cui si considera lo stato superconduttivo o di 'pseudo-gap'. La presenza della gap (di energia 2Δ nel caso superconduttivo) rallenta il definitivo rilassamento delle quasiparticelle foto-indotte con tempi tipici di 1-2 ordini di grandezza maggiori rispetto a quelli osservati nei metalli [4, 3, 2].

Tale fenomeno va interpretato come una manifestazione dell'interazione reciproca tra quasi-particelle e fononi di alta energia ($\hbar\omega > 2\Delta$) [4, 3, 2].

Le prime, ricombinandosi in coppie di Cooper, emettono un fonone di alta energia, mentre, viceversa, un fonone di energia $> 2\Delta$ è in grado di rompere una coppia di Cooper generando una coppia di quasi-particelle.

Tale processo è espresso nelle equazioni di Rothwarf-Taylor (RT) [21]

$$\dot{n} = I_{qp} + 2\gamma N - \beta n^2 \quad (2.11)$$

$$\dot{N} = I_{ph} + \beta n^2/2 - \gamma N - \gamma_{esc}(N - N_{eq}) \quad (2.12)$$

dove n e N rappresentano rispettivamente il numero di quasiparticelle e fononi di alta energia, mentre I_{qp} e I_{ph} sono il numero delle QP e dei fononi foto-indotti dal fascio di pump e β e γ sono le costanti di accoppiamento che regolano la creazione o la distruzione delle coppie di Cooper. La dipendenza quadratica da n^2 è dovuta al fatto che il processo di ricombinazione di due QP è un processo di scattering a due corpi.

Raggiunta la condizione di quasi-equilibrio tra QP e fononi il sistema può rilassare soltanto se il numero di una delle due famiglie diminuisce per effetti diffusivi o dissipativi. Questo avviene più rapidamente per i fononi [3, 22], che possono sia diffondere al di fuori dell'area d'interesse (cioè l'area che viene sondata con il raggio di probe) sia perdere energia per processi anarmonici e scendere al di sotto di 2Δ (questi processi sono sintetizzati nella costante γ_{esc}). In questo caso N_{eq} è il numero di fononi che all'equilibrio hanno energia superiore a 2Δ .

Il modello di Rothwarf e Taylor fornisce informazioni unicamente sul processo di rilassamento delle quasi-particelle ed è stato usato con successo per rappresentare le misure pump-probe in condizioni di debole perturbazione [3, 23].

Tuttavia esso non fa alcuna previsione riguardo all'accoppiamento tra

l'impulso laser e le quasi-particelle in un superconduttore e quindi al numero di quasi-particelle create dall'eccitazione che, come visto per i metalli, è proporzionale alla variazione di riflettività.

In proposito esistono due modelli, che sono stati usati nel passato per descrivere le proprietà dei superconduttori BCS in condizioni di non-equilibrio: il modello T^* di Parker [24] e il modello μ^* di Owen e Scalapino [25]. Nel primo caso, la distribuzione delle quasi-particelle viene descritta come una distribuzione di Fermi-Dirac a temperatura T^* (diversa dalla temperatura iniziale T)

$$f(E_k, T^*) = [1 + \exp(E_k/k_b T^*)]^{-1} \quad (2.13)$$

Nel secondo modello la temperatura viene considerata costante, mentre il potenziale chimico μ^* è diverso da quello di equilibrio, μ ,

$$f(E_k - \mu^*) = [1 + \exp(E_k - \mu^*)]^{-1} \quad (2.14)$$

Recentemente questi modelli sono stati rianalizzati facendo esplicito riferimento alle misure di pump-probe sugli HTSCs. [26] La dipendenza della gap superconduttiva dal numero di quasi-particelle eccitate, n , prevista dai due modelli è illustrata in figura 2.7. Seguendo quindi le previsioni del modello T^* il numero di quasi-particelle eccitate da un impulso laser di intensità E_I è

$$\frac{n(T)}{n(0)} = \left(1 + \frac{2.9 t^3}{E_I}\right)^{2/3} - \left(\frac{2.9 t^3}{E_I}\right)^{2/3} \quad (2.15)$$

dove t è la temperatura ridotta ($\frac{T}{T_c}$) e $n(0)$ il numero di quasiparticelle a $T = 0$.

Il modello μ^* prevede un andamento analogo, ma a differenza di quello T^* prevede anche un'instabilità dello stato superconduttivo quando il numero di

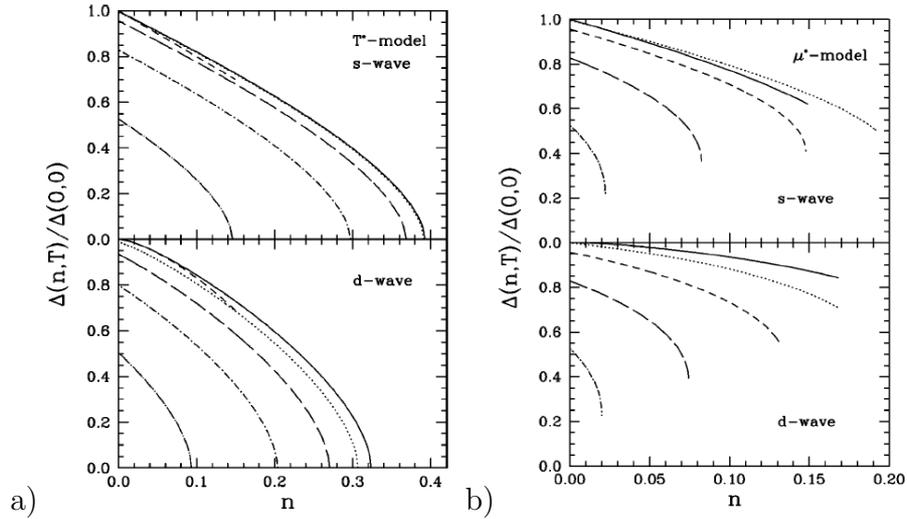


FIGURA 2.7: Immagine da [26]. Energia della gap superconduttiva in funzione del numero di quasi-particelle eccitate a varie temperature del superconduttore secondo le previsioni del modello T^* (a) e del modello μ^* (b). La linea continua corrisponde ad una temperatura ridotta $t=0$, mentre la linea tratteggiata e puntata a $t=0.9$. In (b) le curve si interrompono in corrispondenza del collasso della gap, ovvero quando il modello μ^* fornisce soluzioni non fisiche.

quasi-particelle foto-indotte supera una soglia critica. In tale condizione si ha il collasso della gap superconduttiva e si osserva una transizione di fase del sistema allo stato normale.

Il numero critico di quasi-particelle a cui avviene la transizione in funzione di t è illustrato in figura 2.8, dove sono stati distinti i casi di una gap a simmetria 's-wave' e 'd-wave'. Nel caso 's-wave' è presente una fase inhomogenea in cui si ha la coesistenza dei due stati, superconduttivo e normale. Nel caso di una simmetria di tipo 'd-wave' invece tale regione praticamente scompare.

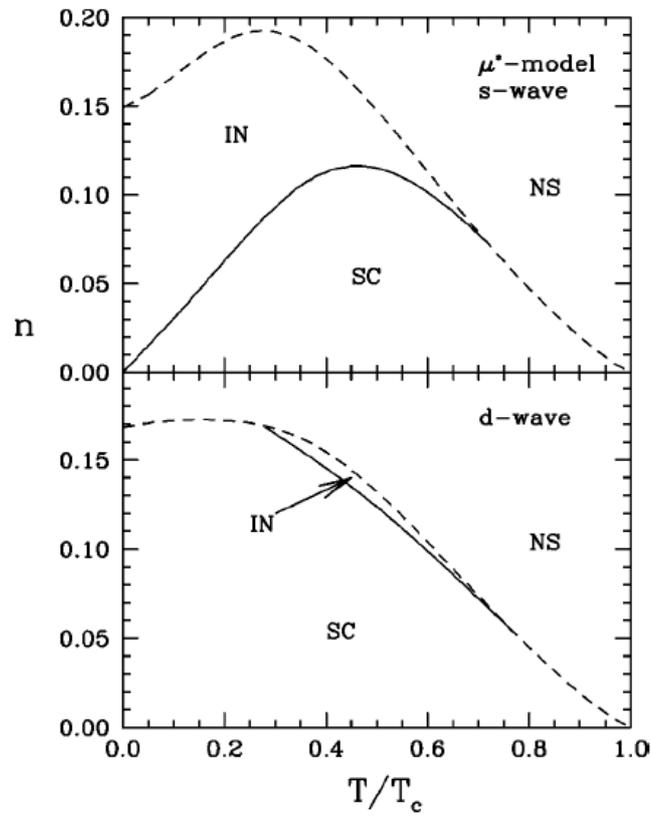


FIGURA 2.8: Immagine da [26]. Diagramma delle fasi secondo il modello μ^* per superconduttori a simmetria s-wave e d-wave. SC si riferisce alle fase superconduttiva, NS a quella non superconduttiva e IN alla fase inomogenea.

Capitolo 3

Caratterizzazione dei campioni

Come noto le proprietà superconduttive dei materiali oggetto di studio di questa tesi dipendono significativamente dalle proprietà strutturali e stechiometriche. Per questo motivo la caratterizzazione di questi sistemi è di fondamentale importanza.

I campioni di $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_1\text{Cu}_2\text{O}_{8+\delta}$ (Bi2212) a disposizione provengono da due serie differenti, una prodotta da Zahid Hasan presso i laboratori del 'Center for Materials Research' Stanford University nel '97 (che nella tesi contrassegneremo con l'acronimo ZN) e una prodotta da Enrico Giannini presso i laboratori dell'Università di Ginevra nel 2005 (campioni contrassegnati dalla sigla EG). Nel primo caso si tratta di una serie di 4 campioni che copre i tre regimi di doping ('under-doped', 'optimally-doped' e 'over-doped'). La seconda serie si limita ai casi 'optimally-doped' e 'over-doped'.

Sebbene gran parte dei campioni siano stati caratterizzati dopo il processo di crescita abbiamo deciso di procedere ad una nuova caratterizzazione completa. In particolare ciò è stato importante per verificare le proprietà dei campioni ZN caratterizzati l'ultima volta nel '97. È noto infatti che il Bi2212 lasciato per lungo tempo in aria tende ad assorbire ossigeno, aumentando il

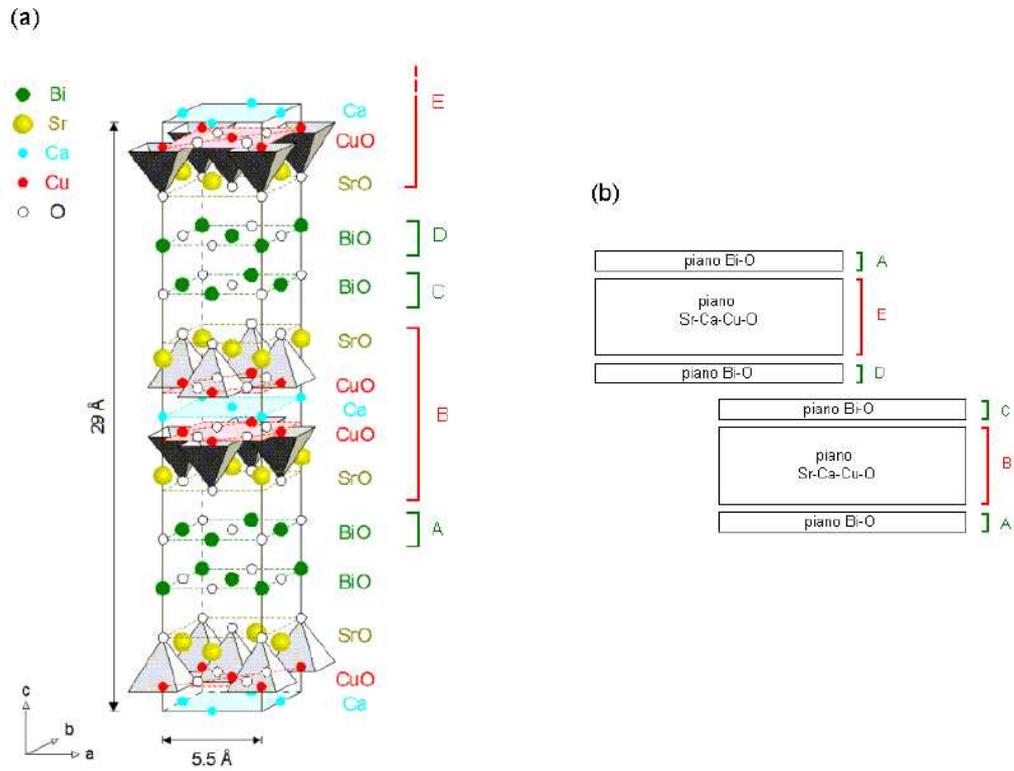


FIGURA 3.1: Immagine da [28]. a) cella unitaria del cristallo Bi2212. b) schematizzazione della sequenza dei piani lungo la direzione c

doping [27]. È proprio su uno dei campioni under-doped di quest'ultima serie (lo ZN ud606) che abbiamo svolto la maggior parte delle misure di riflettività risolta in tempo.

Gli esperimenti di caratterizzazione sono stati svolti nei laboratori del Département de Physique de la Matière Condensée dell'Università di Ginevra.

3.1 Descrizione del cristallo di Bi2212

Il sistema quaternario $\text{Bi}_2\text{O}_3\text{-SrO-CaO-CuO}$ è un sistema estremamente complesso dal punto di vista della crescita e realizzazione di cristalli. Esistono infatti almeno 20 fasi solide distinte dello stesso composto a seconda dei rap-

porti stechiometrici di partenza e dalle condizioni di crescita [29]. Tra queste le tre fasi rilevanti, per le loro proprietà superconduttive ad alta temperatura critica, sono la Bi2201, Bi2212, Bi2223, che si distinguono per il numero di piani CuO presenti nella struttura (rispettivamente 1,2 e 3) e una temperatura critica crescente con il numero di piani. In particolare, la fase Bi2212 risulta la più studiata grazie alla possibilità di sintetizzarla con elevati gradi di purezza [30].

La cella unitaria del Bi2212 ha una struttura ortorombica con asse principale c (vedi figura 3.1). Le dimensioni della cella sono $c = 30.6 \text{ \AA}$, $a = b = 5.4 \text{ \AA}$ [31]. Il cristallo può essere ottenuto sia traslando la cella unitaria in figura 3.1a, sia partendo dal blocco A-B-C illustrato in figura 3.1b e traslandolo di mezza cella lungo il piano di scorrimento Bi-O.

I piani Bi-O vengono rappresentati separatamente in quanto sono i piani di facile sfaldamento a causa del debole legame chimico che si instaura tra loro. Per questo motivo il 'cleaving' del cristallo avviene preferibilmente lungo tali piani e l'asse c risulta essere perpendicolare alla superficie in seguito allo sfaldamento.

L'anisotropia delle proprietà fisiche del materiale è molto marcata. Per esempio nello stato normale i piani Cu-O hanno una conducibilità di tipo metallico, mentre lungo l'asse c il materiale ha un comportamento isolante ($\rho_c \sim 2 - 3 \Omega cm$ mentre $\rho_{ab} \sim 10^{-4} \Omega cm$ [32]). In stato superconduttivo entrambe le resistività scendono sotto il livello di misurabilità e l'anisotropia del sistema si manifesta nel fatto che le lunghezze di coerenza nelle due direzioni sono molto differenti ($r = \frac{\xi_{ab}}{\xi_c} \sim 30$). [33]

Ponendo il materiale ad una pressione parziale di ossigeno (per esempio 1 atm in [34]) ed effettuando un 'annealing' ad alta temperatura (450-800 °C) e successivamente un raffreddamento improvviso ('quenching') alla

temperatura dell'azoto liquido è possibile controllare il contenuto d'ossigeno presente nella struttura [34]. L'effetto di una variazione del contenuto d'ossigeno ($\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_1\text{Cu}_2\text{O}_{8+\delta}$) è quella di inserire buche nei piani CuO rendendo possibile la creazione dello stato superconduttivo a drogaggi opportuni. La temperatura critica a drogaggio ottimale ($\delta = 0.22 \leftrightarrow 0.25$) per un cristallo di Bi2212 è di circa 90 K.

3.2 $\theta - 2\theta$ e rocking curves dei campioni

3.2.1 Descrizione delle tecniche di misura

Per facilitare il lettore, di seguito si fa un breve richiamo dei principi e delle tecniche di misura per la caratterizzazione strutturale. La misura $\theta - 2\theta$, illustrata schematicamente in figura 3.2, si basa sulla legge di Bragg

$$2d \sin(\theta_n) = n\lambda \quad (3.1)$$

che rappresenta la condizione di interferenza costruttiva di ordine n dovuta alle famiglie di piani caratterizzate da una distanza interplanare d , ce riflettono una radiazione di lunghezza d'onda λ ad un angolo θ_n .

Il nome di tale tecnica deriva proprio dal fatto che l'angolo di rilevazione forma rispetto al fascio incidente un angolo doppio (2θ) a quello di incidenza sul campione (θ). In questo modo rimaniamo sempre in condizioni di riflessione e avremo picchi più intensi nel momento in cui l'angolo d'incidenza θ verifica la relazione 3.1.

Tale misura può essere effettuata su polveri o direttamente sul cristallo. Nel primo caso si ha riflessione da tutte le famiglie di piani e si ha un'informazione sulla struttura del materiale. Ciò permette di individuare le fasi cristallografiche del sistema. Nel caso di misura su cristallo la riflessione è

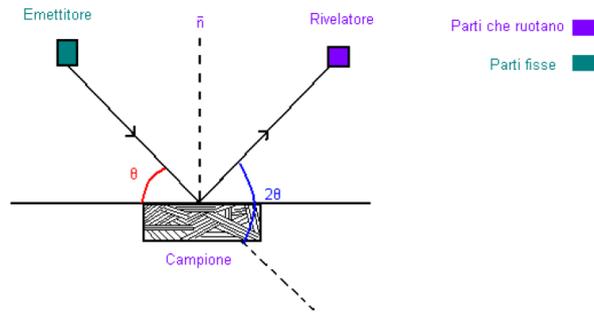


FIGURA 3.2: Immagine da [27]. Schema illustrativo della misura $\theta - 2\theta$

dovuta solo ai piani contrassegnati degli indici di Miller ($00l$), paralleli a quelli di facile sfaldamento, che come visto nella sezione 3.1, sono i piani Bi-O.

Una configurazione sperimentale simile alla $\theta - 2\theta$ permette di effettuare una misura microscopica del livello di omogeneità del campione. Questa misura è nota anche come 'rocking curve'. In particolare questa misura consiste nel porsi su un picco intenso della riflessione $\theta - 2\theta$ e quindi far basculare il piano del campione di un angolo $\pm\Delta\theta$, come illustrato nella figura 3.3.

In tali condizioni di misura per un mono-cristallo ideale, anche una piccola variazione $\Delta\theta$ fa sì che la condizione di Bragg non sia più verificata. Di conseguenza si osserverà un picco riflesso molto stretto in corrispondenza di $\Delta\theta = 0$ (vedi figura 3.3 a). In un cristallo reale i domini non sono tutti orientati lungo lo stesso asse cristallografico per cui si osserva una dispersione gaussiana in $\Delta\theta$. La larghezza di tale gaussiana indica quindi l'omogeneità d'orientazione dei domini del cristallo.

Nel nostro caso, dato che per un cristallo di Bi2212 si osservano solo le riflessioni ($00l$) la misura darà informazioni circa l'orientazione dell'asse c .

Il diffrattometro usato per tali misure è il Siemens D5000 X-Ray Diffrac-

tometer, in cui la sorgente di raggi X è costituita da un filamento di Rame, per cui la lunghezza d'onda sarà quella della riga K_α del Rame ($\lambda = 1,54 \text{ \AA}$). La lunghezza di penetrazione di tale radiazione sul Bi2212 è di 3-5 μm .

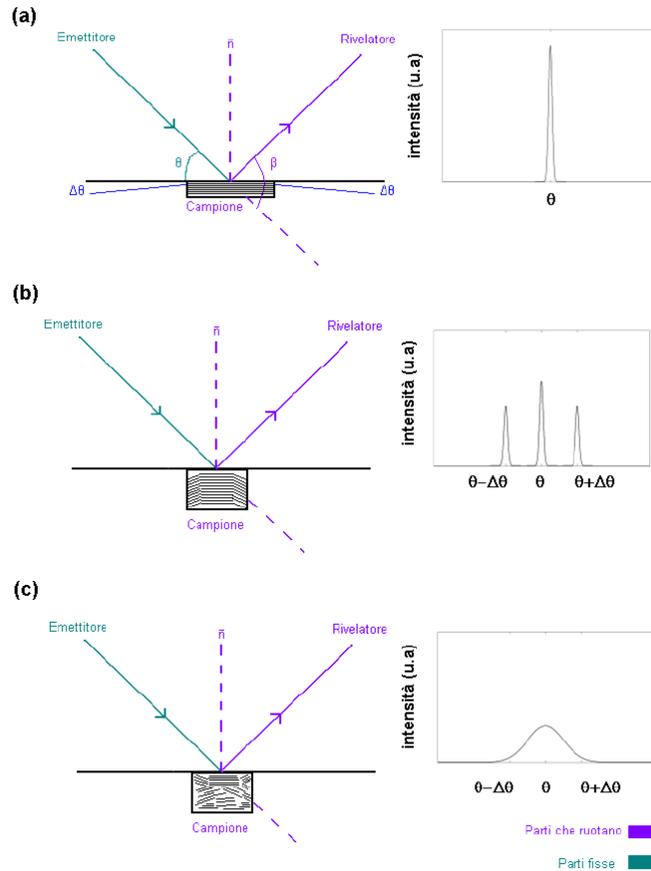


FIGURA 3.3: Immagine da [27]. Schema illustrativo della misura della rocking curve di un cristallo e dei possibili risultati di una misura per un mono-cristallo ideale (a), per un cristallo composto da tre mono-cristalli (b) e per un cristallo reale (c). Il rivelatore in questo caso è fissato nella condizione $\beta = \frac{\theta}{2}$ per $\Delta\theta = 0$.

3.2.2 Risultati

Una prima misura è stata effettuata sulle polveri ottenute da un cristallo 'as grown' (cioè non trattato in pressione parziale d'ossigeno e quindi con livello di doping sconosciuto) proveniente dalla serie EG. Su queste polveri abbiamo svolto una misura $\theta - 2\theta$ che successivamente abbiamo confrontato con i risultati disponibili in letteratura [31]. In particolare utilizzando opportuni programmi di simulazione [35], i riflessi di Bragg osservati sono stati assegnati alle corrispondenti famiglie di piani cristallografici.

Questa verifica preliminare ha permesso di stabilire che il nostro campione ha una fase consistente con quella nota in letteratura per il sistema Bi2212. Questo risultato rimane valido per campioni della stessa serie ma con 'doping' diverso dato che le condizioni di crescita sono state le stesse.

Abbiamo quindi proceduto ad una serie di misure $\theta - 2\theta$ sui cristalli di Bi2212 a drogaggio ottimale di entrambe le serie (ZN e EG). I dati sono stati confrontati con quelli di letteratura [31] (vedi figura 3.4).

La stima delle distanze interplanari sono state ottenute valutando le possibili sorgenti di errore quali:

- un non perfetto allineamento del campione rispetto ai goniometri di precisione che comporta un offset costante in θ
- un offset nell'altezza del campione rispetto a quella tarata che comporta un errore crescente con θ che per angoli piccoli può essere sviluppato come $\Delta\theta \sim \Delta h(1 + \frac{\theta^2}{2})$

Considerando le distanze reciproche tra due picchi consecutivi è possibile eliminare gli errori costanti in θ lasciando solamente i termini quadratici, che per angoli piccoli (ci limitiamo a $\theta < 30^\circ$) sono trascurabili.

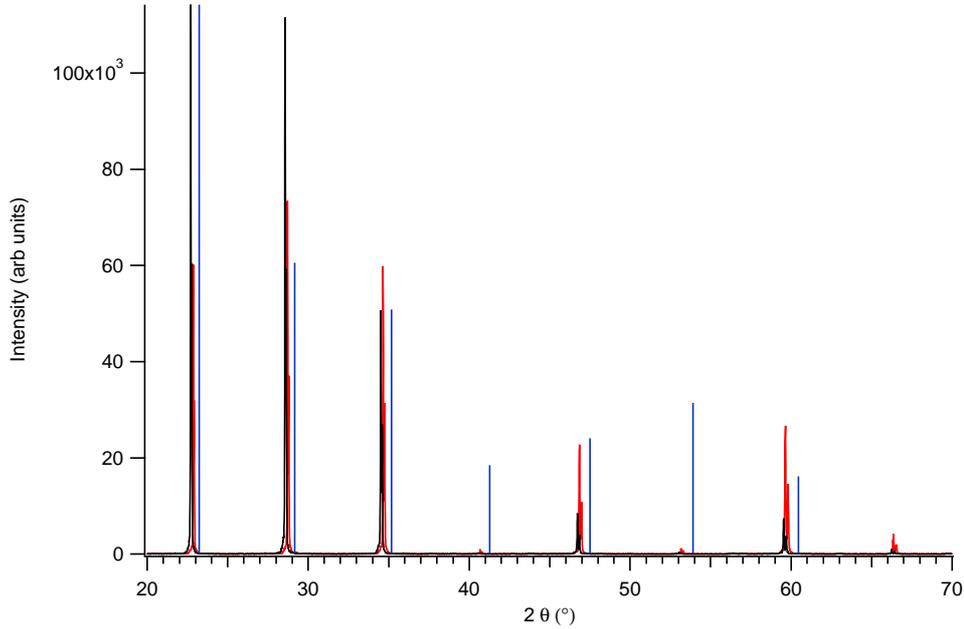


FIGURA 3.4: Intensità del segnale al detector durante la misura $\theta - 2\theta$. In nero per il campione EG op, in rosso per ZN op, mentre in blu ci sono i dati di letteratura da [31]

Usando la relazione 3.1 e sapendo che i picchi visibili sono quelli di ordine pari (per ragioni di simmetria del reticolo [35]) otteniamo la seguente relazione per due picchi consecutivi

$$\theta_{n+2} - \theta_n = \arcsin\left(\frac{(n+2)\lambda}{2d}\right) - \arcsin\left(\frac{n\lambda}{2d}\right) \quad (3.2)$$

In figura 3.5 si vede il grafico dei risultati sperimentali fittato con la relazione 3.2 sapendo che la prima riflessione di Bragg osservata è dovuta ad una interferenza con $n=8$. [35].

Dunque le dimensioni della cella lungo l'asse c sono

- 30.88 \AA per il campione optimally-doped della serie EG
- 30.91 \AA per il campione optimally-doped della serie ZN

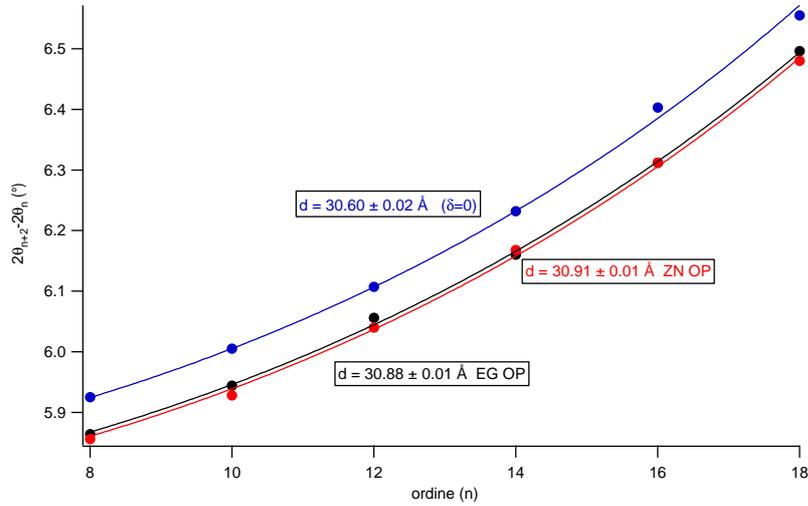


FIGURA 3.5: Distanza angolare tra due picchi consecutivi nella misura $\theta - 2\theta$ su Bi2212. Vedi equazione 3.2 per la funzione con cui si sono fittati i dati.

- 30.60 \AA per il campione non drogato ($\delta = 0$) usato in [31] (30.62 \AA per gli autori)

I risultati ottenuti suggeriscono un leggero allontanamento tra piani Bi-O probabilmente dovuto alla presenza di extra atomi d'ossigeno tra i piani di sfaldamento. Inoltre il valore ottenuto per i due campioni è in ottimo accordo con il risultato disponibile in letteratura per un campione optimally-doped ($\delta=0.22$): $d = 30.873 \text{ \AA}$ [28].

Le rocking curves ottenute per questi due campioni sono illustrate in figura 3.6. Si può notare come il campione proveniente dalla serie EG sia caratterizzato da dei domini mono-cristallini relativamente estesi (si individuano 3 picchi stretti $\text{FWHM} < 0.2^\circ$), mentre per il campione ZN la distribuzione è piuttosto ampia. Da una stima della FWHM otteniamo $\Delta\theta \sim 1^\circ$, con un picco centrale più stretto.

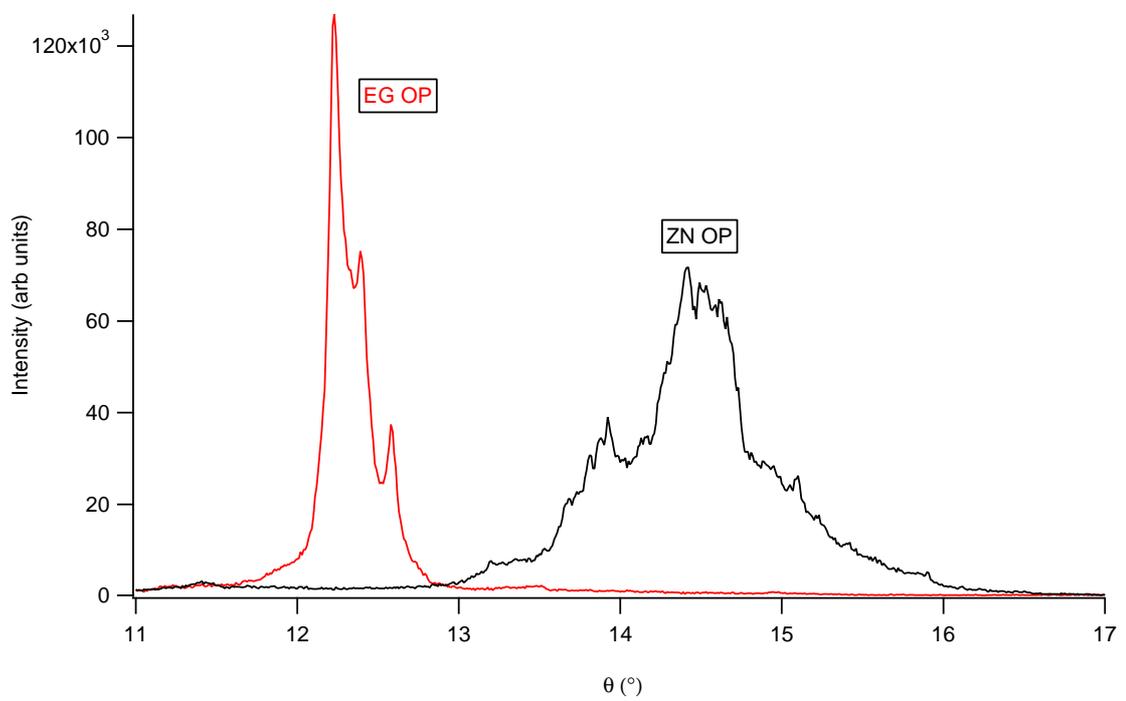


FIGURA 3.6: rocking curve per il campione EG op (curva nera) e il campione ZN op (curva rossa)

3.3 Suscettività magnetica AC e misura delle temperature critiche dei campioni

3.3.1 Descrizione della tecnica di misura

Una misura di suscettività magnetica per un materiale superconduttore di tipo I fornisce un'indicazione molto precisa della temperatura critica T_c . Infatti, grazie all'effetto Meissner la suscettività magnetica definita da

$$\chi = \frac{d\vec{M}}{d\vec{H}}$$

vale $\chi = -1$ in stato superconduttivo (vedi figura 3.7 a), mentre in stato normale si ha $\chi \sim 0$.

Nei superconduttori del II tipo, e tra questi i superconduttori ad alta temperatura, invece il campo magnetico penetra parzialmente nel materiale superconduttore formando tubi di flusso del campo magnetico quantizzati (vortici). Uno schema del diagramma delle fasi nel piano (H,T) è illustrato in figura 3.8. Per questi materiali si definiscono due campi critici, se l'intensità del campo esterno \vec{H} è inferiore al primo campo critico $H_{c1}(T)$ il superconduttore è in stato Meissner, mentre se è compresa tra $H_{c1}(T)$ e $H_{c2}(T)$ il materiale è nello stato misto. Per campi superiori ad $H_{c2}(T)$ il materiale non è più superconduttivo. Nello stato misto la funzione $M(H)$ non è più monodroma e ha una dipendenza più complicata dal campo di stimolo esterno.

Tuttavia, usando la tecnica AC possiamo studiare in maniera abbastanza semplice la χ anche per superconduttori del II tipo. Infatti, se consideriamo un campo \vec{H} di stimolo

$$\vec{H} = \vec{H}_0 \cos(\omega_s t) \tag{3.3}$$

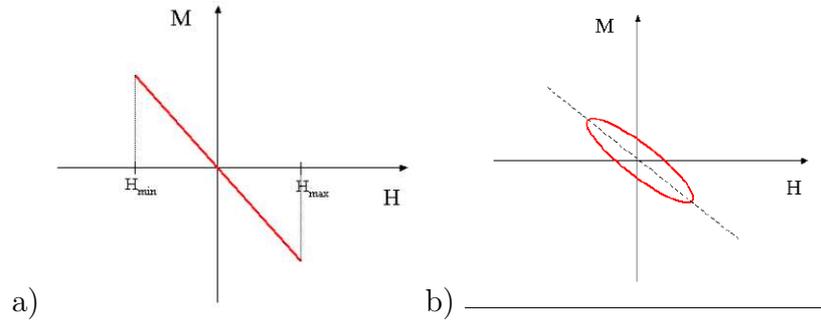


FIGURA 3.7: $M(H)$ per un superconduttore in stato di Meissner (a) e in stato misto (b)

la prima armonica della risposta al campo d'eccitazione è

$$\vec{M} = \vec{M}_0 \cos(\omega_s t + \phi) \quad (3.4)$$

dove la fase ϕ è originata dalla presenza dei vortici magnetici che rendono la magnetizzazione quasi-reversibile sulle scale di tempo considerate in una misura AC.

Quindi, considerando solo la prima armonica la curva $\vec{M}(\vec{H})$ ha una forma

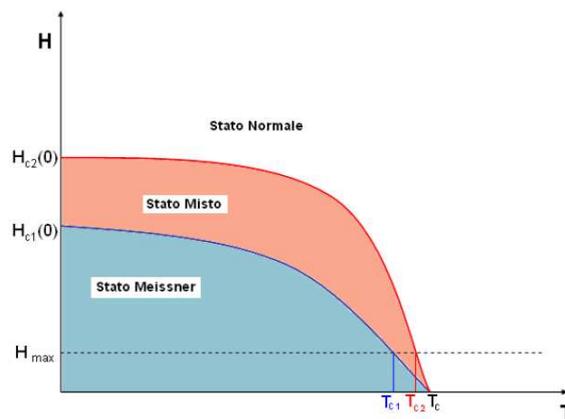


FIGURA 3.8: Schematizzazione del diagramma di fase nel piano (H, T) per un superconduttore del II tipo. Con H_{max} si intende il campo massimo di stimolo nella misura AC. Non appena si raggiunge T_{c1} si ha $\chi_1 \neq -1$

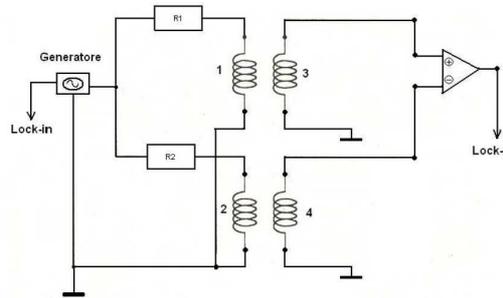


FIGURA 3.9: Schematizzazione circuito del suscettometro AC. Il campione viene posto all'interno della bobina 4 e il campo di stimolo è generato dalla bobina 3.

ellittica (vedi figura 3.7 b). Nello stato misto quindi non vale più la definizione di χ adottata nello stato normale ed essa viene espressa come una quantità complessa. Dalla componente in fase possiamo ottenere la parte reale della suscettività magnetica, χ_1 , che nello stato misto assume valori intermedi tra -1 e 0.

Se usiamo però campi di stimolo inferiori al primo campo critico ($H_0 < \mu_0 H_{c1}$) abbiamo che lo stato misto apparirà solo per temperature molto vicine alla transizione (vedi figura 3.8) per cui la transizione in χ_1 rimarrà abbastanza netta. Nel nostro caso i campi di stimolo massimo sono dell'ordine di $H_0 = 10^{-5} T$

Le misure sono state effettuate in un suscettometro a corrente alternata il cui circuito è schematizzato in figura 3.9 dotato di criostato all'elio liquido a ciclo chiuso in cui il raffreddamento del campione avviene per mezzo di gas di scambio (He).

3.3.2 Risultati

I risultati delle misure di suscettività AC, per i quattro campioni della serie ZN e per l'optimally-doped della serie EG (usato come termine di paragone), sono illustrate in figura 3.10. L'osservazione della transizione in χ_1 conferma la presenza dello stato Meissner e quindi le proprietà superconduttive dei campioni.

La serie EG presenta transizioni più strette rispetto a quella ZN. Ciò può significare che il livello di doping è meno omogeneo per i campioni ZN.

Tuttavia, dobbiamo considerare che il Bi2212 ha un primo campo critico H_{c1} poco intenso e altamente anisotropo [36]:

$$H_{c1\parallel ab} \sim 2 \cdot 10^{-5}T \quad H_{c1\perp ab} \sim 10^{-4}T \quad \text{con } T \sim 0.9T_c$$

Per questo motivo la velocità di salita di χ_1 per $T < T_c$ può essere affetta da vari fattori quali l'orientazione del campione, rispetto al campo magnetico di stimolo (questo è probabilmente il caso della misura sul campione ZN ud603), il diverso comportamento dello stato a vortici a seconda del campione, nonché l'omogeneità del campione stesso. Per dare quindi una valutazione quantitativa delle T_c si usa, convenzionalmente, la temperatura dell'inizio della transizione ('onset') superconduttiva.

I risultati sono riassunti nella seguente tabella, dove sono riportate anche le ampiezze delle transizioni.

campione	$T_c(K)$	$\Delta T_c(K)$
EG op	90	1
ZN ud603	82	2
ZN ud606	82.5	2
ZN op	87.5	2
ZN od	82	3

TABELLA 3.1: T_c ottenute dalle misure di suscettività AC (usando convenzionalmente la temperatura a cui la χ è salita del 90%). ΔT_c indica una stima dell'ampiezza della transizione

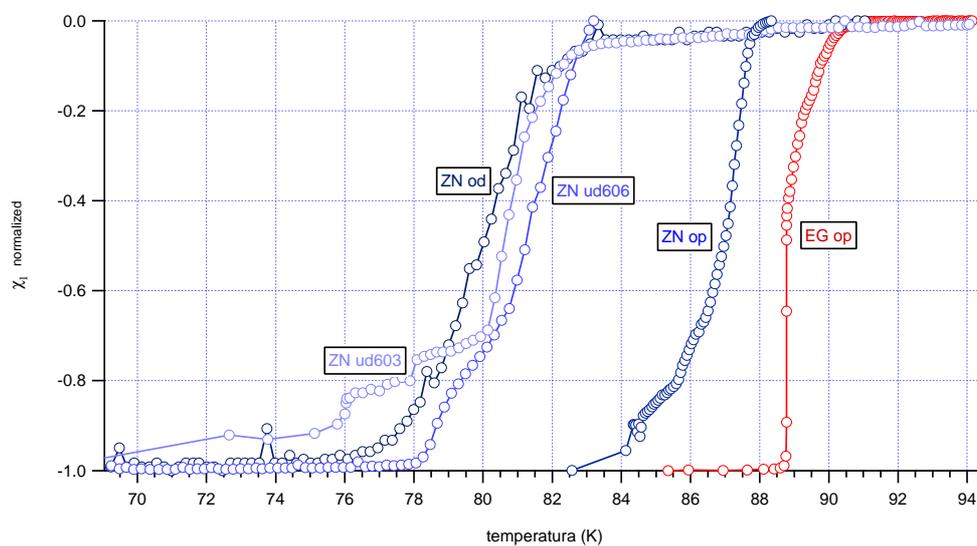


FIGURA 3.10: Parte reale della suscettività magnetica misurata con la tecnica AC descritta nel testo.

Capitolo 4

Apparato sperimentale

4.1 La tecnica pump-probe

La dinamica di ricombinazione delle quasi-particelle in un superconduttore può essere osservata utilizzando la tecnica di pump-probe [2, 3, 4, 5, 37]. Questa tecnica consiste nel dividere un fascio laser caratterizzato da impulsi ultra-veloci (la loro durata temporale nel caso di un laser a Ti:Zaffiro dell'ordine di qualche decina di fs) in due fasci di luce, detti rispettivamente fascio di pompa (pump) e fascio di sonda (probe). Il primo dei due ha lo scopo di eccitare il sistema ed è tipicamente più intenso del fascio di probe che serve invece a monitorare le caratteristiche ottiche del sistema.

L'aspetto peculiare della tecnica pump-probe ottica risiede nel fatto di poter controllare, tramite la variazione dei cammini ottici percorsi dai due fasci laser, il ritardo tra l'eccitazione e la misura. Ciò permette di avere delle risoluzioni temporali sulla dinamica delle proprietà ottiche del sistema non raggiungibili da nessun'altra tecnica sperimentale¹. Infatti se consideriamo

¹I tempi tipici di risposta delle elettroniche di acquisizione più veloci disponibili al giorno d'oggi sono dell'ordine 10^{-10} s

il tempo percorso dalla luce in uno spazio Δx

$$\Delta t = \frac{\Delta x}{c}$$

dove $c \simeq 3 \cdot 10^8 \text{ m s}^{-1}$ si ottiene per $\Delta x = 1 \text{ } \mu\text{m}$ un $\Delta t = 3.3 \text{ fs}$. Variando in maniera controllata tale ritardo è possibile quindi misurare l'evoluzione delle proprietà ottiche a seguito dell'eccitazione del fascio di pompa. In questa tesi le misure effettuate sono misure di variazione di riflettività, ovvero misure pump-probe in cui viene misurata la variazione d'intensità del fascio di probe riflesso dal campione.

4.2 Descrizione dell'apparato sperimentale

La sorgente del fascio laser si basa su un oscillatore ottico, il cui materiale attivo è costituito da un cristallo di Al_2O_3 con impurezze di Titanio (Ti:Zaffiro, Mira Coherent 900), 'pompat' da un laser in continua (Verdi Coherent V10) della potenza di 4,5W.

Nella cavità ottica dell'oscillatore è inserito un Cavity Dumper (Pulse Switch della APE) che permette di variare il 'repetition rate'² tra 27 MHz (metà della frequenza naturale della cavità) e 200 Hz. Oltre alla possibilità di controllare il repetition rate, il cavity dumper permette di ottenere una maggiore energia per impulso ($\sim 55 \text{ nJ}$) (il funzionamento e le caratteristiche di tale dispositivo verranno espone nel paragrafo 4.3). La luce laser prodotta dall'oscillatore ha una lunghezza d'onda accordabile tra 700 nm e 900 nm con un'intensità massima a 800 nm. Inoltre essa è polarizzata linearmente con direzione orizzontale.

Il percorso ottico è illustrato in figura 4.1. La radiazione incide su un beam splitter 70%-30%. Il fascio trasmesso (quello più intenso) costituisce

²la frequenza degli impulsi di luce

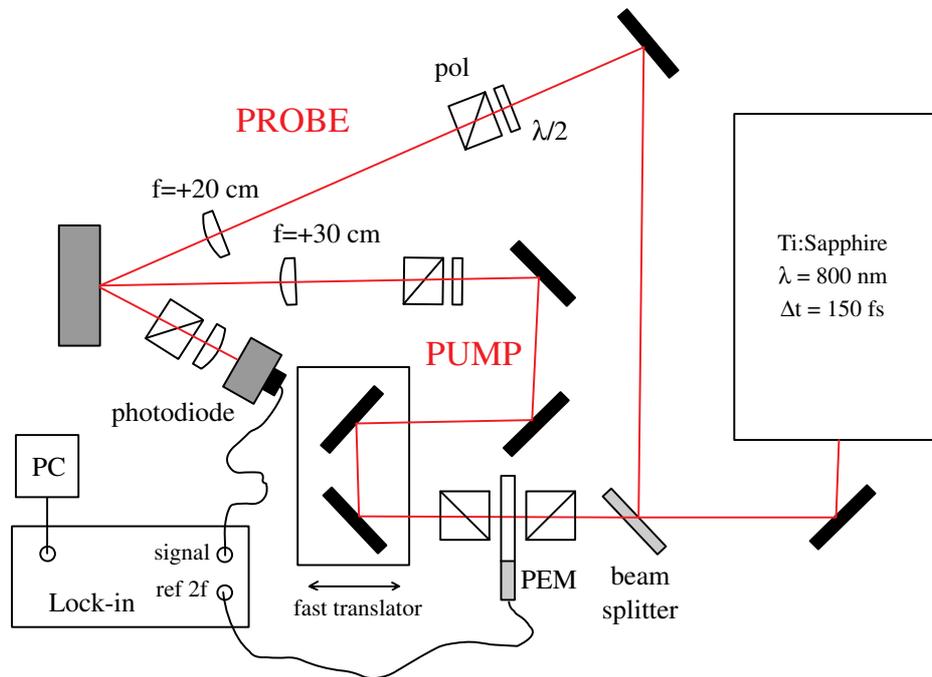


FIGURA 4.1: Apparato sperimentale per misure di riflettività risolte in tempo

la pompa e passa due volte attraverso la linea di ritardo costituita da un traslatore meccanico di precisione controllato elettronicamente (M351DD PI motors). Il sistema di misura adottato prevede il movimento rapido del traslatore in modo da ottenere una misura pump-probe completa in 2 s di traslazione (in questo lavoro il range tipico dei ritardi considerati è di ~ 20 ps). La posizione del traslatore viene misurata in tempo reale misurando il segnale di una sonda Hall che misura il campo prodotto da un magnete solidale con la slitta in movimento. Come vedremo in seguito, questa tecnica di misura a "scansione veloce" è stata preferita alla tecnica in cui la scansione avviene lentamente, in quanto ha permesso di raggiungere un miglior rapporto segnale/rumore.

Il 'pump' è modulato in ampiezza a 100KHz per mezzo di un modulatore foto-elastico (photo-elastic modulator, PEM-90 Hinds instruments). La

modulazione serve come riferimento per l'acquisizione del segnale per mezzo dell'amplificatore lock-in. Infatti se il sistema ha una risposta lineare all'eccitazione foto-indotta la variazione di riflettività sarà modulata alla medesima frequenza del fascio di pompa. In alcune situazioni (per esempio nel caso di repetition rate inferiori ai 100kHz) si è usato al posto del PEM un 'chopper' meccanico a 3kHz.

Il fascio di pump viene quindi focalizzato sul campione per mezzo di una lente di lunghezza focale $f = +30 \text{ cm}$. Il fascio di sonda viene invece focalizzato per mezzo di una lente di focale $f = +20 \text{ cm}$. Gli 'spot' di pump e probe vengono visualizzati sulla superficie del campione per mezzo di una telecamera CCD (Thor Labs) dotata di obiettivo ingranditore 10X. Il diametro degli 'spot' è rispettivamente di $60 \mu\text{m}$ per il pump e di $40 \mu\text{m}$ per il probe. In questo modo l'area illuminata dal probe è all'interno dell'area eccitata dal pump. Usando una lente di focale $f = +50\text{cm}$ il probe riflesso dal campione viene focalizzato su un fotodiodo di silicio collegato all'amplificatore lock-in. Il tempo d'integrazione τ del lock-in è di 5ms. Ciò pone un limite all'effettiva risoluzione temporale, per cui, considerando una velocità di scansione di 2 s e un range di ritardi dell'ordine dei 20 ps, quest'ultima è di $\sim 50 \text{ fs}$.

Le misure ottenute reiterando la scansione vengono quindi acquisite e mediate, ottenendo un migliore rapporto segnale/rumore a seconda del tempo di acquisizione utilizzato (tipicamente in questo lavoro 10 minuti). Adottando invece una tecnica a "scansione lenta", il tempo d'integrazione τ del lock-in è più lungo, mentre la misura finale si ottiene con una singola traslazione. Il vantaggio del metodo a "scansione veloce" è il fatto di poter svolgere una misura arbitrariamente lunga, senza per questo compromettere la misura a causa di eventuali oscillazioni del criostato, dovute a dilatazioni termiche, o per fluttuazioni della sorgente, che possono avvenire su scale di tempo dei

minuti.

Sul cammino ottico sia del pump che del probe è collocata una lamina $\lambda/2$ accoppiata a un polarizzatore che permette di controllare polarizzazione e intensità della radiazione incidente.

Le misure sono state effettuate con polarizzazioni del pump e del probe incrociate. Questo schema evita possibili effetti d'interferenza tra il campo di 'pump' e quello di 'probe' sul campione. Ponendo un ulteriore filtro polarizzatore prima del fotodiodo, è possibile evitare effetti spuri legati alla luce del pump diffusa dal campione.

Per poter studiare la fase superconduttiva è necessario porre il campione in un criostato capace di scendere significativamente sotto T_c . Il criostato usato è il modello LT-3-110 della Helitran ed è raffreddato alla temperatura d'ebollizione dell'elio liquido in condizioni normali di pressione (vedi sezione 4.4). Esso è posto su una slitta meccanica millimetrica che permette il movimento longitudinale rispetto il fascio laser in maniera da aggiustare finemente la posizione del campione rispetto il fuoco delle lenti. La temperatura minima registrata dalla termocoppia posta sul portacampioni è di circa 10K.

Il vuoto nel criostato è ottenuto tramite una pompa turbo-molecolare (Pfeiffer) capace di raggiungere pressioni dell'ordine di $10^{-6}mbar$.

I principali miglioramenti sperimentali apportati nel corso della presente tesi sono:

- montaggio e messa a punto del criostato che rende possibile lo studio di campioni a temperature fino a 10K
- introduzione del cavity dumping che permette di aumentare l'energia per impulso e contemporaneamente diminuire il riscaldamento medio della porzione di materiale illuminata abbassando il repetition rate del laser

- utilizzo della tecnica d'acquisizione a scansione veloce dove una misura completa (range $\sim 20\text{ps}$) viene effettuata in 2s, permettendo di raggiungere una risoluzione sulla variazione di riflettività relativa ($\frac{\Delta R}{R}$) di $\sim 10^{-6}$ in 10 minuti d'acquisizione

4.3 Il cavity dumper

Un laser a Ti:Sa in modalità mode-locking è in grado di generare impulsi della durata di $\sim 100\text{fs}$ e il repetition rate dipende dalla lunghezza della cavità ed è dell'ordine di $\sim 100\text{MHz}$, i.e. un impulso ogni $\sim 10\text{ns}$. In alcuni sistemi fisici tale distanza temporale non è sufficiente per un rilassamento completo del sistema. In questo caso è necessario ridurre il repetition rate del laser. Ciò si può fare con un apposito dispositivo che seleziona solo alcuni degli impulsi laser generati dall'oscillatore. Tale dispositivo può essere esterno (Pulse Picker) o interno alla cavità (Cavity Dumper). Nel primo caso si ha una riduzione di $\sim 40\%$ dell'energia per impulso, mentre con il Cavity Dumper si ha un aumento considerevole di energia per impulso (vedi figura 4.2) in quanto gli impulsi non utilizzati rimangono in cavità accumulando quindi energia. L'utilizzo di un cavity dumper risulta quindi utile non soltanto per ottenere la tunabilità del repetition rate del laser, ma anche per aumentare l'energia per impulso disponibile.

Il funzionamento del cavity dumper si basa sull'effetto acusto-ottico, per cui una modulazione di densità generata da un'onda acustica in un materiale si traduce in una modulazione dell'indice di rifrazione della luce. In questo modo un fascio luminoso passante attraverso il materiale viene parzialmente diffratto ad un angolo che varia a seconda della periodicità della modulazione. Nello specifico in un cavity dumper tale fenomeno si verifica in un cristallo

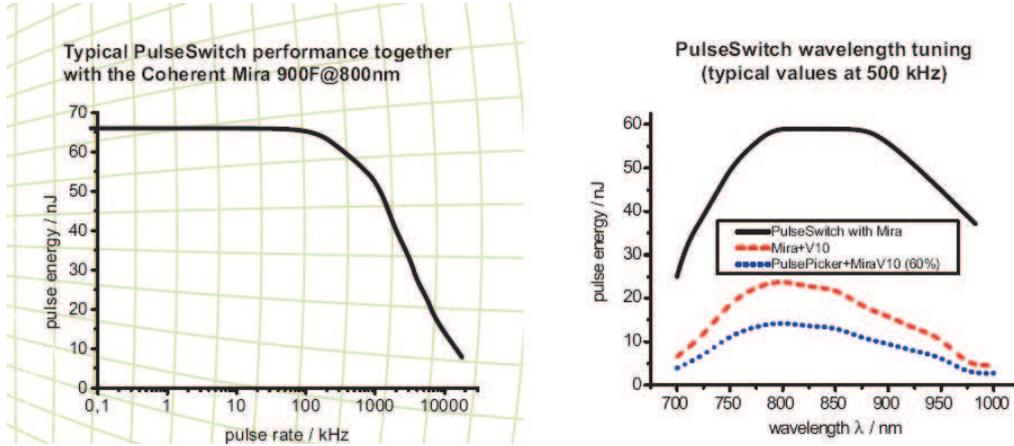


FIGURA 4.2: Immagine tratta da [38]. Caratteristiche tecniche del cavity dumper Pulse Switch della APE. Andamento dell'energia per impulso a sinistra in funzione del repetition rate, mentre a destra a 500 kHz in funzione della lunghezza d'onda comparato con le prestazioni del medesimo oscillatore MIRA da solo e accoppiato con un Pulse Picker

di silice fusa attaccato a un materiale piezo-elettrico a cui vengono applicati degli impulsi di RadioFrequenza. Tali impulsi sono sufficientemente corti da far sì che il fenomeno di diffrazione avvenga per un singolo impulso e non per il successivo. L'impulso diffratto costituisce il fascio laser in uscita.

Il cavity dumper utilizzato è a doppio passaggio ed è schematizzato in figura 4.3. I due impulsi uscenti, dopo il primo passaggio attraverso il cristallo, subiscono una variazione in frequenza dovuta all'interazione con l'onda acustica e il loro campo elettrico è dato da

$$E_s = \sqrt{\eta} E_0 \cos(\omega t + \Omega t + \Phi)$$

$$E_d = \sqrt{\eta - 1} E_0 \cos(\omega t + \Omega t + \Phi)$$

dove Ω e Φ sono frequenza e fase dell'impulso RF, E_0 l'involuppo temporale dell'impulso laser, ω la frequenza del laser e η esprime l'efficienza dell'effetto di diffrazione. Dopo il secondo passaggio il campo elettrico dell'impulso uscente dalla cavità è rappresentato da

$$E_{extr} = 4\sqrt{\eta - 1}\sqrt{\eta}E_0 [\cos(\omega t + \Omega t + \Phi) + \cos(\omega t - \Omega t - \Phi)] \quad (4.1)$$

A causa dell'interferenza tra i due contributi è necessario ottimizzare la fase Φ tra il segnale RF e l'impulso laser al fine di ottenere una buona efficienza dal cavity dumper.

4.4 Il criostato

L'LT-3-110 è un criostato a ciclo aperto in cui lo scambio di calore tra liquido refrigerante e campione avviene tramite un dito freddo di rame OFHC (Oxygen Free and High Conductivity Copper). Quest'ultimo è posto a contatto con il portacampioni (realizzato ad-hoc partendo da un blocco unico di rame OFHC per ottimizzare la conduzione termica). L'interno del dito freddo è cavo ed è riempito dal liquido refrigerante (in questo caso elio liquido a 4.2K). L'elio viene trasferito da un contenitore adiabatico di 100 l pressurizzato a 2,5 psig (5 psig durante la fase di raffreddamento da temperatura ambiente) per mezzo di un sifone flessibile. Il riscaldamento del liquido durante il trasferimento viene minimizzato usando due sifoni coassiali; il flusso d'elio interno

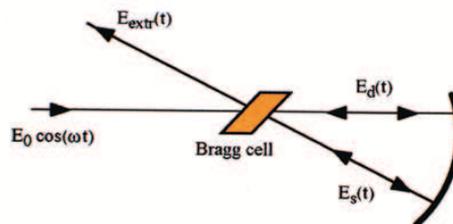


FIGURA 4.3: Rappresentazione schematica del funzionamento di un cavity dumper a doppio passaggio

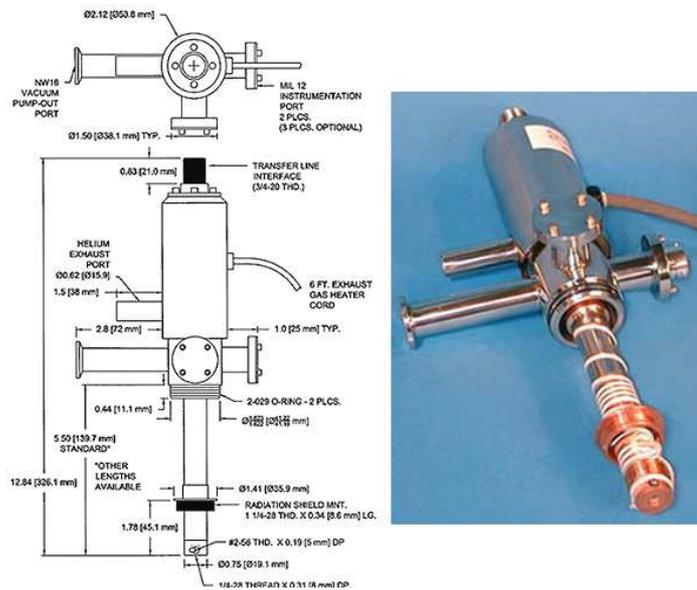


FIGURA 4.4: Foto e schema tecnico del criostato LT-3-110 della Helitran usato per le misure

raffredda il campione, mentre quello esterno funge da isolante termico. L'elio che evapora viene riscaldato prima di essere espulso in maniera da non danneggiare il criostato stesso.

Il dito freddo è fittamente avvolto da un cavo che costituisce il riscaldatore la cui potenza massima dissipata è 36 W. Esso è interfacciato da un controller della LakeShore (modello 331) collegato a due termocoppie di silicio in contatto col dito freddo e con il portacampioni rispettivamente. In questo modo è possibile mantenere il campione alla temperatura desiderata. Quest'ultimo è attaccato al portacampioni con della pasta d'argento.

Attorno al portacampioni, è posto un tubo cilindrico, in contatto termico con il dito freddo, che funge da schermo della radiazione infrarossa. Esso è dotato di una piccola apertura in corrispondenza del campione che permette l'accesso alla luce del laser. Con questo dispositivo sono state raggiunte temperature di ~ 10 K sul campione.

La camera a vuoto del criostato permette di lavorare in condizioni di alto vuoto ed è pompata per mezzo di una pompa turbo-molecolare Pfeiffer capace di mantenere un vuoto di $\sim 5 \cdot 10^{-7} \text{ mbar}$. Queste condizioni di vuoto non sono tuttavia sufficienti ad evitare la condensazione di impurezze (principalmente acqua) sulla superficie del campione. Il segnale della misura di riflettività si degrada lentamente una volta raffreddato il campione fino a raggiungere, dopo alcune ore, circa un terzo del segnale iniziale.

Per ovviare a questo inconveniente risulta utile chiudere con una finestra ottica anti-riflesso il foro dello schermo protettivo contro la radiazione infrarossa. In queste condizioni le molecole che desorbono dalle pareti esterne della camera si attaccheranno preferibilmente sullo schermo, che si trova alla stessa temperatura del campione. Di fatto con questo accorgimento il segnale rimane sufficientemente costante durante un'intera serie di misure.

4.5 Il modulatore foto-elastico

Il modulatore fotoelastico opera nel nostro caso come un modulatore di intensità del fascio di pompa, tramite una modulazione della polarizzazione del campo elettrico.

Esso sfrutta le proprietà foto-elastiche della silice fusa, per cui l'indice di rifrazione varia a seconda dallo stress meccanico a cui esso è sottoposto. Tale stress viene applicato periodicamente ad una frequenza di 50 kHz per mezzo di un materiale piezoelettrico lungo una direzione di riferimento. Ciò fa sì che la componente di polarizzazione lungo tale asse avrà una velocità di propagazione modulata nel tempo e il materiale diventa birifrangente. Si ha quindi che lo stato di polarizzazione in uscita sarà modulato a 50 kHz.

Un PEM è uno strumento molto versatile, può essere adoperato per varie

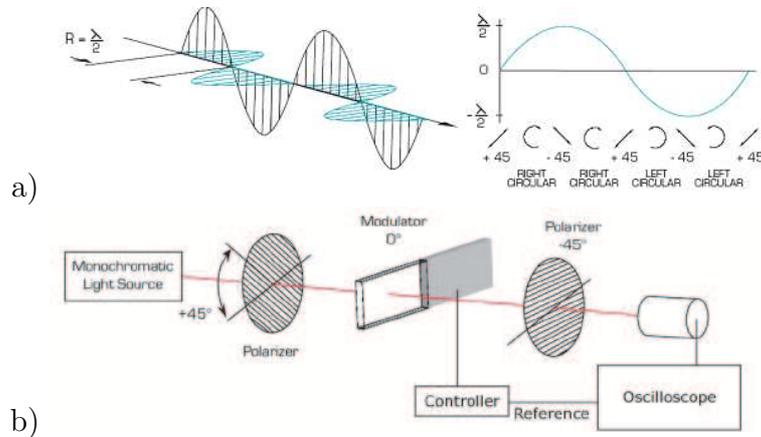


FIGURA 4.5: a) stato di polarizzazione della luce in uscita dal PEM in configurazione $\frac{\lambda}{2}$ b) serie di elementi ottici per ottenere la modulazione del segnale in configurazione $\frac{\lambda}{2}$

applicazioni nel campo dell'ottica³. Nel nostro caso è stato usato come modulatore d'intensità adottando la configurazione detta $\frac{\lambda}{2}$ e illustrata in figura 4.5. In questa configurazione lo sfasamento massimo tra la componente di polarizzazione modulata e l'altra è proprio metà della lunghezza d'onda della luce. Per studiare la modulazione che risulta da questa configurazione adottiamo il formalismo delle matrici di Jones. Il PEM può essere rappresentato dalla seguente matrice [39]

$$\begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & e^{i\Delta \sin \omega t} \end{pmatrix} \quad (4.2)$$

Se quindi consideriamo le tre matrici corrispondenti agli elementi ottici considerati in figura 4.5 il campo elettrico in uscita sarà

$$\begin{pmatrix} E_x \\ E_y \end{pmatrix} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 1 & -1 \\ -1 & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & e^{i\Delta \sin \omega t} \end{pmatrix} \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 1 & 1 \\ 1 & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_0 \\ E_0 \end{pmatrix} \quad (4.3)$$

³per esempio per misure di ellissometria o di effetto Kerr

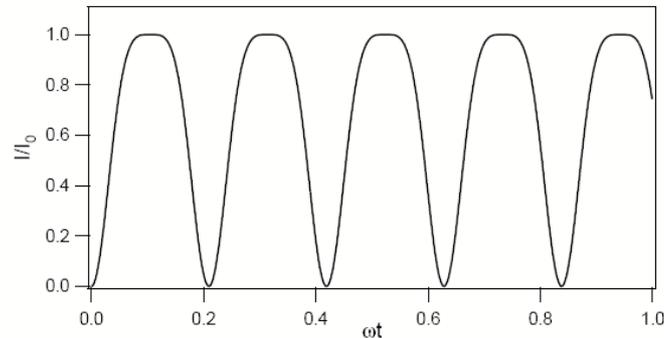


FIGURA 4.6: Grafico dell'intensità in uscita dalla configurazione $\frac{\lambda}{2}$ illustrata in figura 4.5 secondo l'equazione 4.5 con $\Delta = \pi$

Dove E_0 è $\sqrt{\frac{I_0}{2}}$ e I_0 l'intensità del campo in ingresso. Dal momento che l'oscillatore Ti:Sa genera luce polarizzata linearmente nel piano orizzontale lo stato di polarizzazione entrante risulta già orientato a 45° rispetto il PEM e quindi il primo polarizzatore è superfluo.

Svolgendo il calcolo si ottiene il seguente risultato per campo elettrico ed intensità uscenti

$$\begin{pmatrix} E_x \\ E_y \end{pmatrix} = \frac{\sqrt{I_0}}{2\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 - e^{i\Delta \sin \omega t} \\ -1 + e^{i\Delta \sin \omega t} \end{pmatrix} \quad (4.4)$$

$$I = \frac{I_0}{2} [1 - \cos(\Delta \sin(\omega t))] \quad (4.5)$$

Se consideriamo $\Delta = \pi$ (configurazione $\frac{\lambda}{2}$), come si nota in figura 4.6, la modulazione dell'intensità uscente è 2ω , con $\omega = 50kHz$ frequenza con cui il PEM modula lo stato di polarizzazione della luce.

In questa configurazione il PEM funziona quindi da 'chopper' ottico a 100kHz, con un 'duty cycle' del 65,2%

4.6 Coincidenza e caratterizzazione degli impulsi

Per poter applicare la tecnica pump-probe è necessario essere nella condizione di coincidenza temporale tra il pump e il probe. Per trovare il cammino ottico che soddisfa tale condizione è possibile utilizzare un cristallo non lineare trasparente (β -BaB₂O₄ di tipo I nel nostro caso) posto in luogo del campione (per fare ciò è necessario quindi spostare il criostato con l'apposita slitta). Un fascio laser impulsato incidente con una particolare angolazione (tale da soddisfare la condizione di 'phase matching') su tale materiale produce radiazione di frequenza doppia rispetto a quella incidente (produzione di seconda armonica, SHG). Tale radiazione è facilmente osservabile in trasparenza.

Come prima cosa è necessario trovare la coincidenza spaziale sulla superficie del cristallo per mezzo della telecamera, quindi si varia il cammino ottico di uno dei due fasci. Nel momento in cui si raggiunge la condizione di coincidenza temporale compare un terzo spot di seconda armonica in trasparenza. Ciò è dovuto al fatto che nel processo di generazione si ha la conservazione del momento e quindi la radiazione di seconda armonica emessa ha un vettore d'onda che è la somma dei vettori d'onda degli impulsi che la generano. L'intensità di questo terzo fascio è proporzionale alla cross-correlazione temporale dei due impulsi (trattandosi dello stesso fascio si chiama quindi autocorrelazione), ovvero

$$I_{corr}(t) = \int_{-\infty}^{\infty} I(t')I(t - t')dt' \quad (4.6)$$

Massimizzando tale intensità troviamo la condizione di coincidenza temporale dei due impulsi, mentre misurandone l'andamento in funzione del ritardo possiamo ottenere la durata e il profilo temporale dell'impulso.

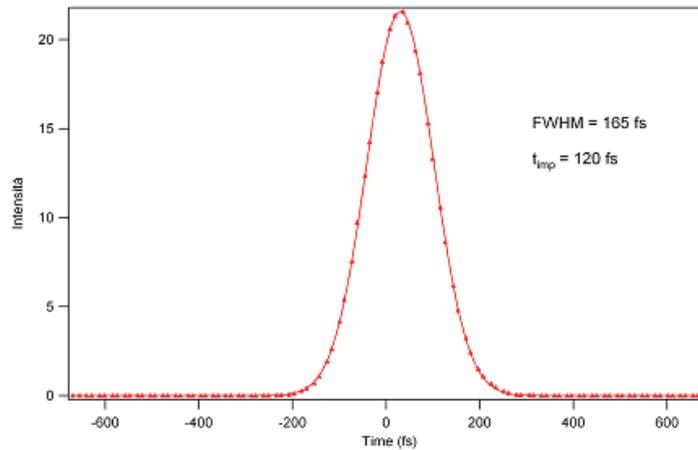


FIGURA 4.7: Autocorrelazione dell'impulso laser ottenuta per mezzo della generazione di seconda armonica con un cristallo BBO

Assumendo un profilo di tipo gaussiano del fascio laser, la larghezza a metà altezza della funzione di autocorrelazione ($FWHM_{corr}$) è legata alla durata temporale del singolo impulso σ_t ⁴

$$\sigma_t = \frac{1}{\sqrt{2}} FWHM_{corr} \quad (4.7)$$

Per cui dalla figura 4.7 otteniamo una durata dell'impulso $\sigma_t = 120 fs$. Per determinare invece le caratteristiche spaziali dell'impulso si fa uso della telecamera CCD. Sapendo che la dimensione dei pixel della telecamera è di $7 \mu m$ e l'ingrandimento dell'obiettivo è 10X si può risalire dall'immagine alla dimensione degli spot. In particolare, dalle larghezze a mezza altezza dei profili spaziali (vedi figura 4.8) otteniamo che il diametro di pump e probe sono rispettivamente di $60 \mu m$ e di $40 \mu m$.

⁴intesa come larghezza a mezza altezza del profilo temporale

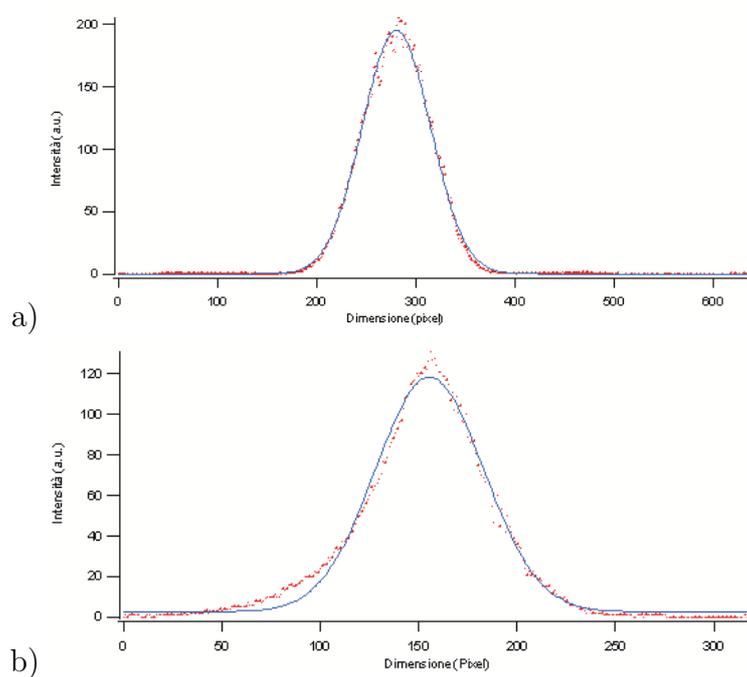


FIGURA 4.8: Sezioni del profilo spaziale d'intensità degli spot di pump (a) e probe (b) ottenuti con la telecamera CCD. Dal fit gaussiano si ottiene una larghezza a metà altezza rispettivamente di $60\mu m$ e $40\mu m$

Capitolo 5

Risultati

Le misure pump-probe sono state svolte sul campione leggermente sottodrogato UD606 della serie ZN di Bi2212 ($T_c = 82\text{ K}$).

Per studiare la dinamica del processo di eccitazione i dati sono illustrati in funzione del ritardo, t , tra pump e probe. In prossimità di $t=0$, dove pump e probe sono in coincidenza temporale, si osserva una variazione della riflettività che rappresenta la risposta del sistema convoluta con il profilo temporale dell'impulso laser utilizzato, ovvero

$$\Delta R(t) = \int_{-\infty}^{\infty} I_P(t')g(t-t')dt' \quad (5.1)$$

dove con $g(t-t')$ indichiamo la risposta del sistema e con $I_P(t')$ il profilo temporale dell'impulso, discusso nel paragrafo 4.6 e caratterizzato da una larghezza a mezza altezza σ_t .

Nei primi picosecondi le dinamiche misurate sono legate alle interazioni elettrone-elettrone ed elettrone-fonone. Per ritardi maggiori gli effetti dominanti sono quelli di tipo termico che rilassano sulle scale di tempo dei nanosecondi [40] e possono in parte influenzare gli impulsi successivi.

Infatti, il segnale a ritardi negativi, cioè prima dell'eccitazione del sis-

tema, non è nullo a causa dell'effetto di riscaldamento locale in condizioni stazionarie. Tale effetto dipende dal 'repetition rate' del laser ed è stato studiato in dettaglio nel paragrafo 6.1 risolvendo le equazioni di diffusione del calore in regime stazionario.

Se non specificato diversamente le misure illustrate di seguito sono effettuate con 'repetition rate' sufficientemente bassi (50-200 kHz) da limitare questo effetto.

Nella discussione che segue, per tempo rilassamento si intende il parametro temporale τ della funzione $g(t)$ nella relazione 5.1, assumendo che essa sia rappresentabile da un prodotto di una funzione di Heaviside $\Theta(t)$ (che esprime la causalità dell'evento) con una o più funzioni esponenziali.

5.1 Misure pump-probe a basse fluenze

Se la fluenza del laser di pompa ϕ è poco intensa il sistema reagisce all'eccitazione rimanendo in un regime debolmente perturbato.

In queste condizioni il segnale pump-probe permette di distinguere le tre fasi del sistema, stato normale, stato di pseudo-gap e stato superconduttivo (vedi figura 1 e 5.2)

In stato normale il segnale impulsivo (cioè a ritardo nullo) è positivo e può essere attribuito agli elettroni fuori equilibrio eccitati dalla pompa. Il tempo di salita del picco ('rise time') rispecchia il profilo dell'impulso laser, compatibilmente con un'interazione e-e è più rapida di 120 fs [5].

Il gas di elettroni cede quindi l'energia in eccesso ai fononi con un tempo di rilassamento di circa 400 fs. È possibile confrontare tale risultato con $\tau = 110$ fs, ottenuto da Brorson et al. [37] a fluenze di 2 ordini di grandezza inferiori. Interpretando il nostro risultato con un modello a due temperature

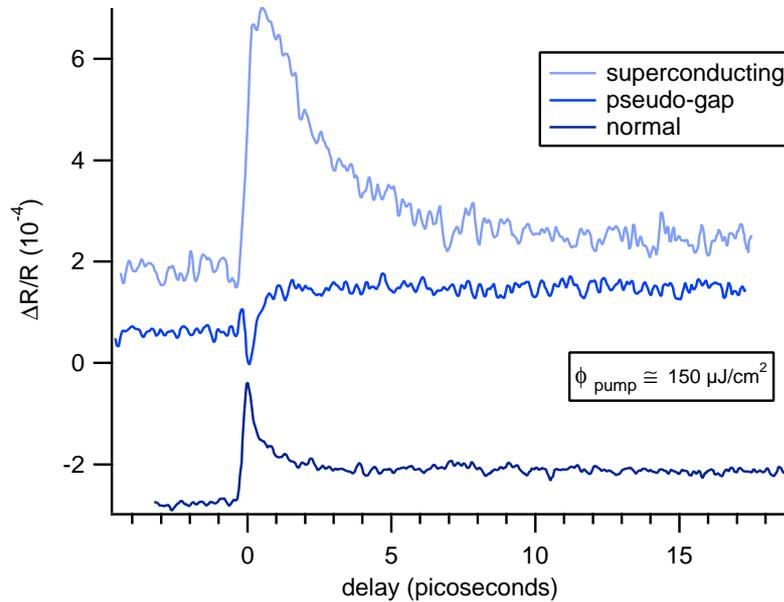


FIGURA 5.1: Variazioni di riflettività nelle tre fasi del sistema, normale (300K), pseudo-gap (136K) e superconduttiva (61K) a fluenze della pompa dell'ordine di $150 \mu\text{J}/\text{cm}^2$. È stato introdotto un "offset", per rendere più chiara la visione.

otteniamo una temperatura elettronica $T_e \sim 2000 \text{ K}$ (dall'eq.2.10). Confrontando tale risultato con $T_e = 530 \text{ K}$ di Brorson et al. [37], questa stima risulta ragionevole nel nostro caso.

A ritardi maggiori si osserva un effetto di riscaldamento del reticolo, che si traduce in un 'offset' costante rispetto al valore di $\frac{\Delta R}{R}$ a ritardi negativi.

Al di sotto della temperatura $T^* \sim 170 \text{ K}$, il sistema transisce alla fase di pseudo-gap [1] e la variazione di riflettività iniziale cambia segno.

Tale transizione avviene nel nostro caso a una temperatura di $\sim 178 \text{ K}$ ed è riportata più in dettaglio nella figura 5.4a. Essa è caratterizzata dalla comparsa di un picco negativo molto veloce, con un tempo di decadimento paragonabile alla larghezza dell'impulso d'eccitazione. Il 'rise time' di questo contributo è leggermente più lento della durata dell'impulso e il massimo viene raggiunto a ritardi di $\sim 100 \text{ fs}$ (vedi figura 5.2).

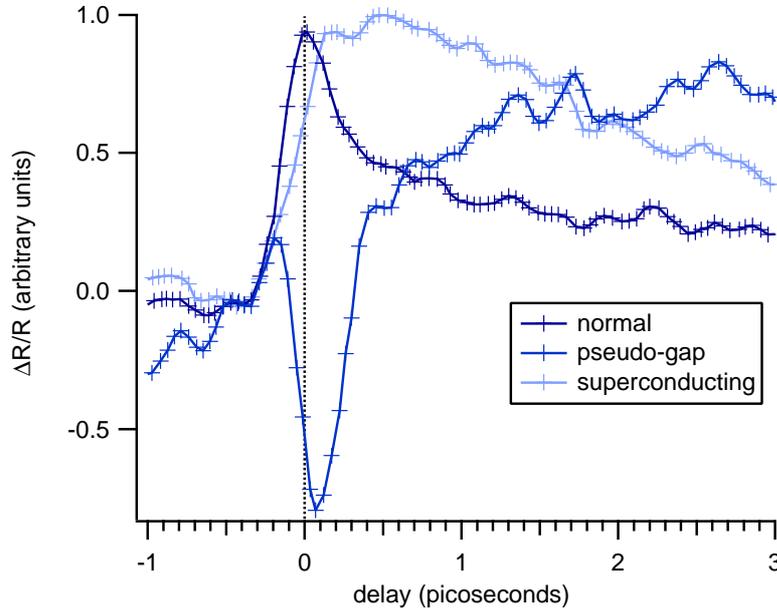


FIGURA 5.2: Variazioni di riflettività normalizzate nelle tre fasi del sistema, normale (300K, $\phi \sim 200 \mu\text{J}/\text{cm}^2$), pseudo-gap (155K, $\phi \sim 150 \mu\text{J}/\text{cm}^2$) e superconduttiva (61K, $\phi \sim 100 \mu\text{J}/\text{cm}^2$).

Questa osservazione non corrisponde al comportamento generalmente osservato nei sistemi in cui è presente una gap nello spettro delle eccitazioni. La presenza di una gap, infatti, causa un rallentamento della dinamica di ricombinazione. Nel nostro caso, al contrario, il tempo di rilassamento τ è più rapido di quello misurato in stato normale. Ad ogni modo i risultati ottenuti rispecchiano altre misure riportate in letteratura [41, 42]. Tuttora non esiste un modello che spieghi tale comportamento.

A temperature $T < T_c$ il comportamento cambia drasticamente (vedi figura 5.4b), sia per quanto riguarda la variazione di riflettività massima che per il tempo di rilassamento del sistema. La dinamica in questo caso è caratterizzata da un tempo di salita ('rise time') più lento della durata dell'impulso ($\sim 400 \text{ fs}$) e un tempo di rilassamento di circa 3 ps. Il ritardo nella salita del picco è già stato osservato nell' $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ da Han et al.

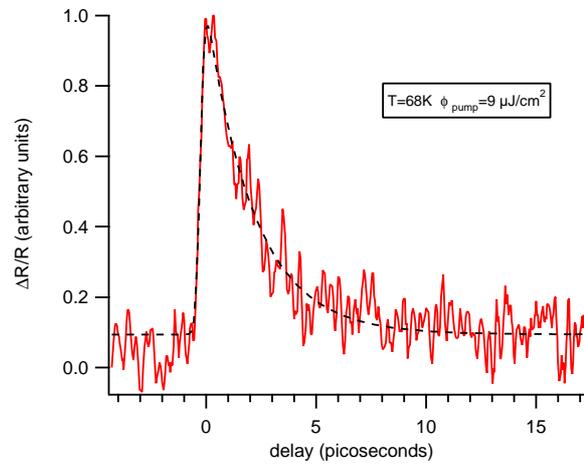


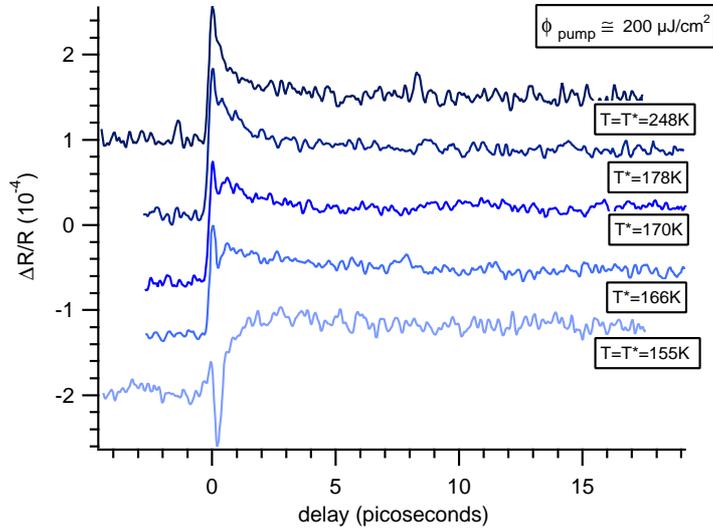
FIGURA 5.3: Variazioni di riflettività normalizzate in stato superconduttivo (61K) alla fluena più bassa ottenuta, $\phi \sim 9 \mu J/cm^2$.

[43] e può essere spiegato integrando le equazioni di Rothwarf-Taylor corrette con dei termini aggiuntivi dovuti all'interazione tra quasi-particelle di alta energia e fononi [40].

In figura 5.3 è illustrata una misura pump-probe effettuata alla fluena più bassa raggiunta ($9 \mu J/cm^2$). Il τ misurato è di circa 2 ps, confrontabile con $\tau = 1.7 ps$ ottenuto da Gedik et al. [2] a una fluena di $1 \mu J/cm^2$. In tale lavoro la dinamica osservata è stata attribuita alla ricombinazione delle quasi-particelle a formare coppie di Cooper.

La variazione di riflettività per energie del fotone di 1,5 eV è quindi una misura sensibile allo stato superconduttivo e in grado di distinguere tra i tre stati del sistema.

a)



b)

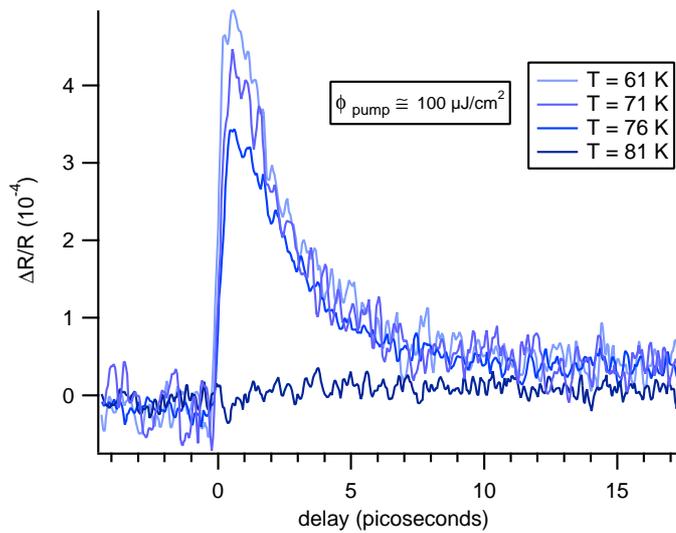


FIGURA 5.4: Variazioni di riflettività a cavallo delle due transizioni di fase del sistema. In (a) dallo stato normale a quello di pseudo-gap, in (b) da stato di pseudo-gap a stato superconduttivo. Le temperature nel grafico (a) sono state corrette tenendo conto degli effetti di riscaldamento medio, dato che le misure sono state effettuate a repetition rate diversi. Le temperature effettivamente misurate dalla termocoppia sono 248,172,167,165,155 K e le misure sono state effettuate rispettivamente a repetition rate di 25, 500, 250, 100, 25 kHz. In (b) è stato introdotto un offset tra le misure per rendere più chiara la visione.

5.2 Misure pump-probe e di linearità in funzione dell'intensità dell'eccitazione

Di seguito sono riportate le misure condotte a temperatura fissata e al variare dell'intensità del fascio di pump. Queste misure permettono di passare da un regime in cui la perturbazione del sistema è piccola ad uno in cui il sistema è fortemente eccitato.

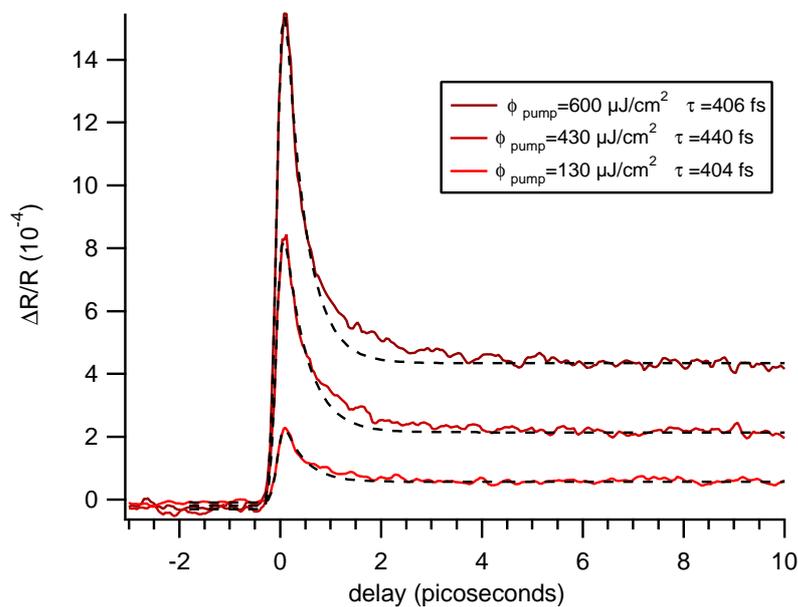
A questo scopo è utile misurare il segnale di una misura pump-probe a ritardo fissato (per esempio a $t=0$) al variare l'intensità. Chiameremo queste ultime misure di linearità, dato che dipendono dalla linearità della risposta del sistema.

Nello stato normale non si hanno cambiamenti qualitativi e il tempo di rilassamento rimane costante alle differenti intensità ($\tau \sim 400$ fs, vedi figura 5.5a). Questo tempo di rilassamento è stato interpretato usando un modello a due temperature (vedi paragrafo 5.1). L'intensità di picco risulta lineare in funzione dell'intensità dell'eccitazione (fig.5.5b).

Nello stato di pseudo-gap la risposta del sistema cambia qualitativamente al variare dell'intensità dell'eccitazione (vedi figura 5.6). Il contributo positivo della parte veloce diventa man mano dominante, fino ad alte intensità in cui la dinamica rispecchia quella dello stato normale.

Un comportamento analogo si osserva anche nella fase superconduttiva (vedi figure 5.7 e 5.8).

a)



b)

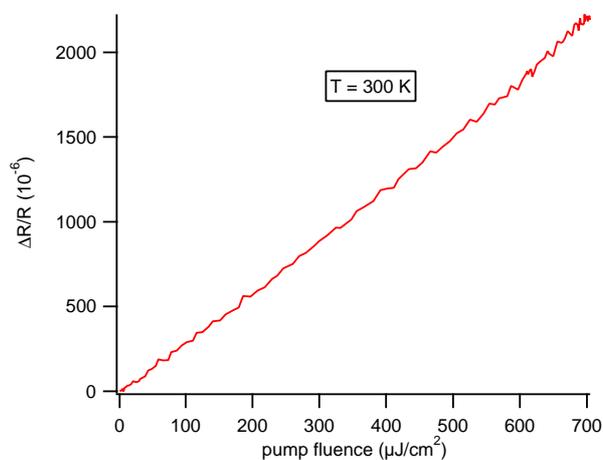
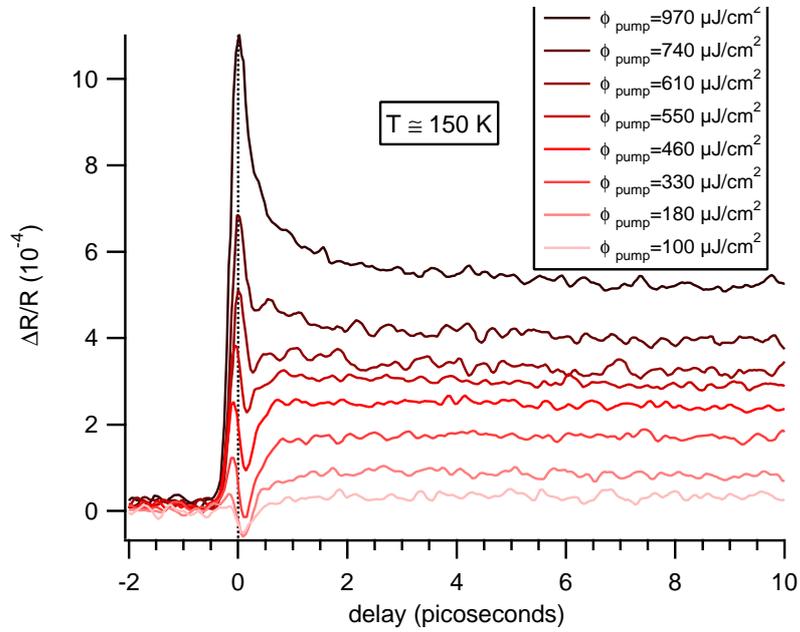


FIGURA 5.5: Stato normale. a) Variazioni di riflettività in funzione del ritardo a diverse intensità della pompa. I fit e i tempi di rilassamento τ sono ottenuti da una funzione $g(t)$ esponenziale decrescente. La minimizzazione dei quadrati è stata effettuata nel range (-1ps:1ps) per cui τ è il tempo di rilassamento iniziale. b) Variazione di riflettività a ritardo fissato in funzione dell'intensità della pompa.

a)



b)

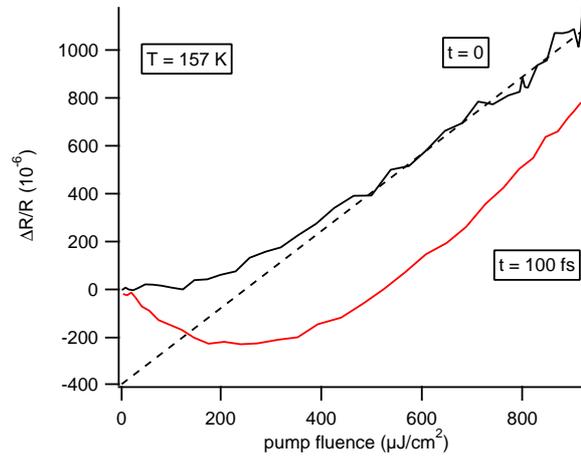


FIGURA 5.6: Stato di pseudo-gap a) Variazioni di riflettività in funzione del ritardo a diverse intensità della pompa. b) Variazione di riflettività a ritardo fissato in funzione dell'intensità della pompa.

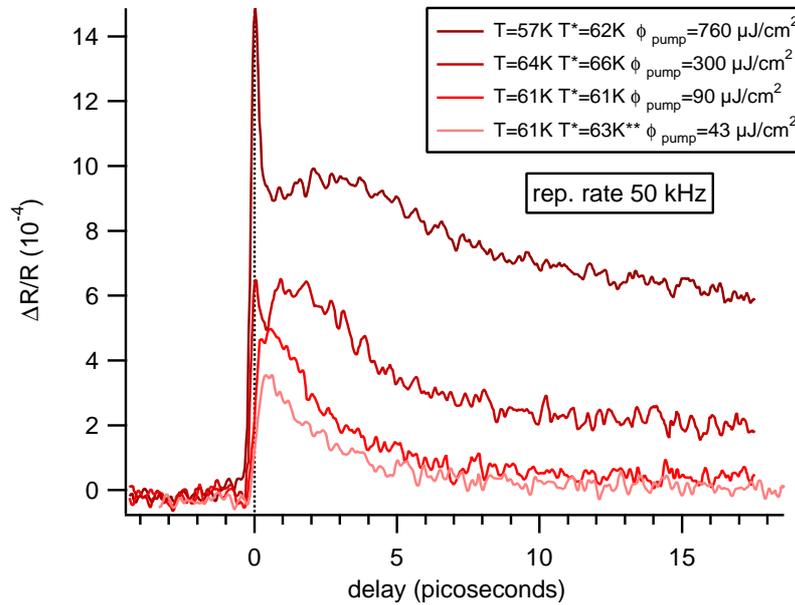


FIGURA 5.7: Stato superconduttivo ($T \sim 60K$). Variazioni di riflettività in funzione del ritardo a diverse intensità della pompa. T^* indica la temperatura locale stimata (vedi testo). **La misura a fluensa più bassa è stata effettuata a repetition rate di 500 kHz per migliorare il rapporto segnale/rumore.

All'aumentare dell'intensità si assiste ad un cambio significativo nella dinamica delle quasi-particelle e alla comparsa del picco veloce ($\tau \sim 0.4 ps$) associato allo stato normale. Ad alte intensità il contributo a decadimento lento, che a basse fluenze è stato interpretato come la dinamica di ricombinazione di quasi-particelle a formare coppie di Cooper, è caratterizzato da un "rise time" particolarmente lento e il massimo di questo contributo si osserva a ritardi di 2-3 ps (si veda il picco largo nelle misure ad alta intensità, fig. 5.8 e 5.7).

È centrale, a questo punto, chiarire sperimentalmente se queste osservazioni sono condizionate da processi di riscaldamento. La risposta del sistema $g(t)$ (eq. 5.1), dipende dai parametri T (temperatura) e ϕ (fluensa del 'pump'). Tuttavia, anche se la T misurata per mezzo della termocoppia è

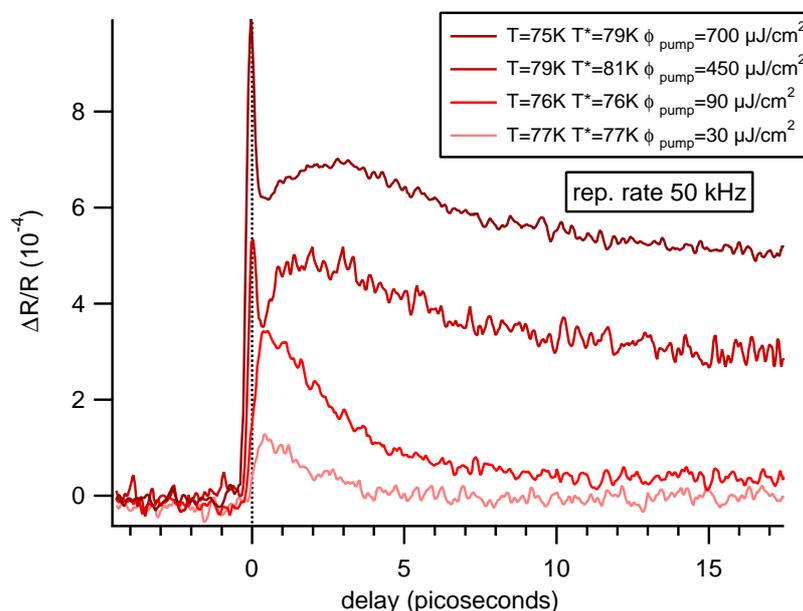


FIGURA 5.8: Stato superconduttivo ($T \sim 75\text{K}$). Variazioni di riflettività in funzione del ritardo a diverse intensità della pompa. T^* indica la temperatura locale stimata (vedi testo).

costante, la temperatura locale nello 'spot' del laser può essere più alta a causa del riscaldamento medio indotto. In particolare, come si vedrà nella sezione 6.1, la variazione di temperatura è proporzionale alla potenza del laser $\Delta T \propto P_L$.

Risulta utile quindi disporre di un sistema tipo 'cavity dumping' che permette di variare il 'repetition rate', mantenendo costante ϕ e cambiando P_L . Le misure sono state dunque effettuate alla medesima temperatura iniziale, ma ad un 'repetition rate' di 500 kHz. In questo modo gli effetti di riscaldamento medio sono 10 volte più intensi (vedi figura 5.9), e si osserva la scomparsa del contributo associato alla dinamica superconduttiva per fluenze superiori a $250 \mu\text{J}/\text{cm}^2$. Questo può indicare un superamento termico locale della T_c . Questa ipotesi è stata confermata dalle simulazioni descritte nella sezione 6.1 e le temperature locali stimate $T^* = T + \Delta T$ sono state inserite nel

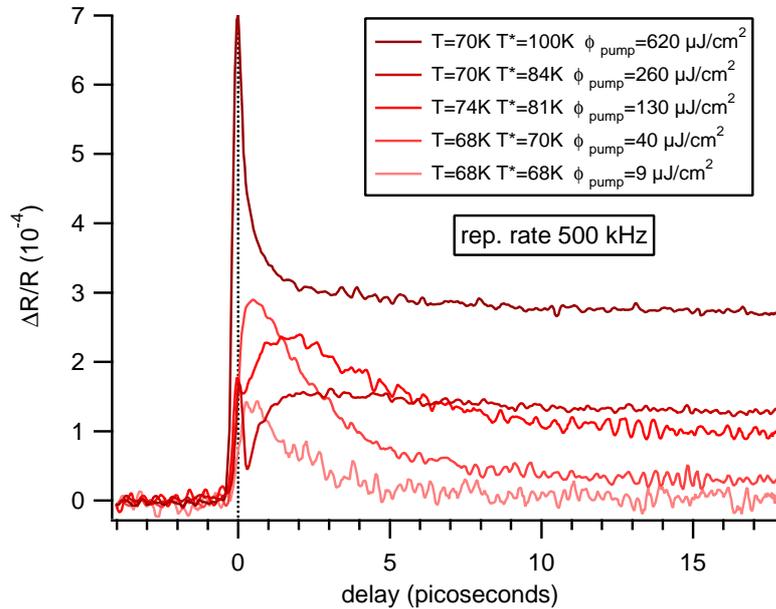


FIGURA 5.9: Stato superconduttivo ($T \sim 75\text{K}$). Variazioni di riflettività in funzione del ritardo a diverse intensità della pompa. Le misure sono state effettuate ad un repetition rate di 500 kHz. T^* indica la temperatura locale stimata (vedi testo).

grafico 5.9.

Le curve di linearità nello stato superconduttivo sono illustrate nelle figure 5.10, 5.11 e 5.12 e sono state effettuate a diversi repetition rate per confermare questa ipotesi e per distinguere gli effetti termici da quelli impulsivi. In particolare si può notare come a repetition rate decrescenti la curva di linearità tenda ad un'unica curva, sintomo di effetti di riscaldamento via via meno intensi. Per repetition rate inferiori a 250 kHz la differenza tra le curve diventa trascurabile. Questo risultato indica che le caratteristiche delle misure di linearità a bassi repetition rate sono da attribuire a processi fuori equilibrio (impulsivi).

Individuato quindi il repetition rate a cui gli effetti termici diventano trascurabili (~ 50 kHz), si può procedere ad un'analisi delle caratteristiche

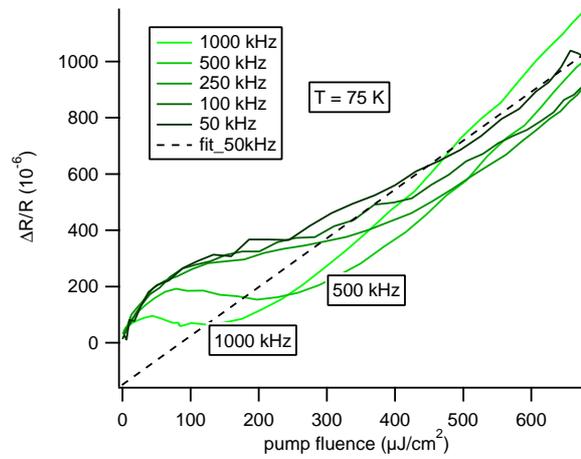


FIGURA 5.10: Stato superconduttivo. Variazione di riflettività a ritardo fissato in funzione dell'intensità della pompa a diversi repetition rate.

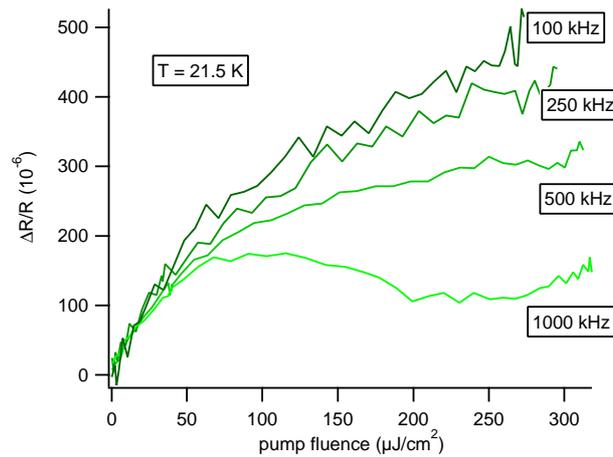


FIGURA 5.11: Stato superconduttivo. Variazione di riflettività a ritardo fissato in funzione dell'intensità della pompa a diversi repetition rate.

delle curve di linearità.

Ciò che si osserva da queste ultime misure è la saturazione, al crescere della fluenza, del contributo legato alla ricombinazione di quasi-particelle a formare coppie di Cooper e la comparsa di una parte lineare corrispondente al picco veloce osservato nei grafici in fig.5.7 e 5.8. Il primo effetto è una dimostrazione che il sistema, in fase superconduttiva, è perturbato in maniera

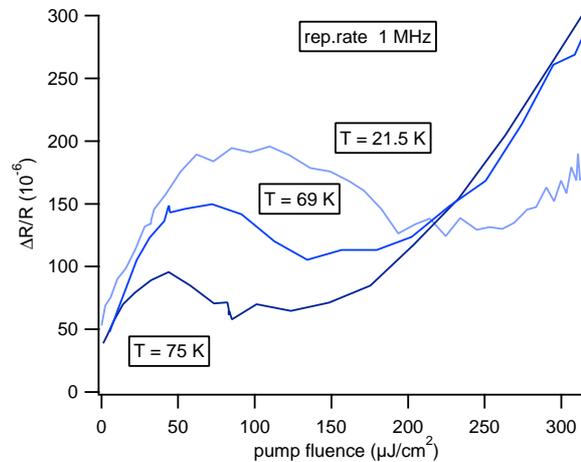


FIGURA 5.12: Stato superconduttivo. Variazione di riflettività a ritardo fissato in funzione dell'intensità della pompa a diverse temperature a repetition rate di 1 MHz.

significativa dal fascio laser di pompa. Per spiegare questo fenomeno si farà riferimento ai modelli T^* e μ^* (vedi paragrafo 6.2).

Per quanto riguarda invece la parte lineare ad alte fluenze si può notare che essa non intercetta l'origine degli assi. Questa osservazione vale sia per lo stato superconduttivo che per lo stato di pseudo-gap (vedi figure 5.10 e 5.6b) e sembra indicare la presenza di una fluenza critica oltre cui compare questo contributo veloce (che, come visto, ha lo stesso τ della dinamica in stato normale).

Tale risultato si può interpretare come la possibile manifestazione di una transizione di fase del sistema allo stato normale, facendo riferimento al modello μ^* , che contempla questa ipotesi. La possibilità di una transizione di fase è ragionevole se si considera che il numero di quasi-particelle eccitate dal 'pump' è dello stesso ordine di quello previsto dal modello μ^* per causare l'instabilità della gap superconduttiva, a una temperatura di ~ 70 K. Questo argomento verrà affrontato in dettaglio nel paragrafo 6.2.

Capitolo 6

Discussione

6.1 Effetti di riscaldamento

Il riscaldamento dovuto al laser è un problema sperimentale da tenere in seria considerazione nella tecnica pump-probe. In particolar modo nel momento in cui si discutono possibili transizioni di fase del sistema.

La temperatura locale T in un solido isotropo è determinata dalle equazioni di diffusione del calore in presenza di una fonte esterna

$$C(T)\frac{\partial T}{\partial t} = P_L + \kappa(T)\nabla^2 T \quad (6.1)$$

dove P_L è la potenza sull'unità di volume del laser e κ e $C(T)$ sono rispettivamente la conducibilità termica e il calore specifico del materiale.

Considerando come fonte di calore un laser impulsato ai femtosecondi si hanno due effetti di riscaldamento. Il primo riguarda il riscaldamento prodotto da un singolo impulso laser, mentre il secondo, detto di riscaldamento medio, è quello prodotto in condizioni stazionarie. Quest'ultimo effetto fa sì che il volume studiato abbia una temperatura iniziale $T^*=T+\Delta T$, diversa dalla temperatura del resto del campione T , e va studiato in dettaglio.

Usando la soluzione asintotica dell'equazione 6.1 del calore per un solido con costanti di conducibilità termica κ_x , κ_y e κ_z , coefficiente di assorbimento α e riflettività R , semi-infinito ($z > 0$) e un laser di potenza P_L con profilo Gaussiano (diametro d) otteniamo l'espressione per la variazione di temperatura [5, 44]

$$\Delta T(x, y, z) = \frac{\alpha(1-R)P_L^3 e^{\alpha z}}{4\pi^2 d^2 \kappa_x \kappa_y \kappa_z} \times \int_0^{2\pi} d\phi \int_0^\infty dr r \cdot e^{\left[-\left(\frac{x}{d} - \frac{r \cos \phi}{\kappa_x d}\right)^2 - \frac{y}{d} - \frac{r \sin \phi}{\kappa_y d}\right]^2} \left[\int_{k_z z}^\infty \xi(u) du + \int_{-k_z z}^\infty \xi(u) du \right] \quad (6.2)$$

dove $\xi(u) = e^{-\alpha u / k_z} / \sqrt{r^2 + u^2}$, $k_x^2 = \kappa_y \kappa_z / P_L^2$, $k_y^2 = \kappa_x \kappa_z / P_L^2$ e $k_z^2 = \kappa_x \kappa_y / P_L^2$ e ϕ , r e u sono le variabili d'integrazione. Abbiamo quindi simulato l'effetto di riscaldamento in regime stazionario integrando numericamente l'equazione 6.2. I parametri adottati si riferiscono a un campione di Bi2212 orientato con l'asse cristallografico c lungo la direzione z ad una temperatura di 75 K, per cui $k_z = 0.7 \frac{W}{m K}$ e $k_x = k_y = 4.9 \frac{W}{m K}$ [32], $\alpha = 6 \times 10^6 m^{-1}$ [14], $d = 60 \mu m$ e $R = 0.08$. La forte anisotropia delle condicibilità termiche causa una dissipazione del calore molto più efficace lungo le direzioni x e y .

Una sezione del profilo spaziale della variazione di temperatura è illustrata in figura 6.1, dove si è considerato il caso di una potenza di pompa di 2.5 mW (ovvero il caso delle misure del grafico 5.8).

Il volume con cui interagisce il probe ($d = 40 \mu m$) ha una variazione di temperatura media di $\Delta T = 5 K$, con massimo $\Delta T(0, 0, 0) = 5.6 K$, raggiungendo una temperatura massima di 80.6 K ancora inferiore a T_c (82 K).

La variazione di temperatura ΔT è lineare con la potenza del fascio di

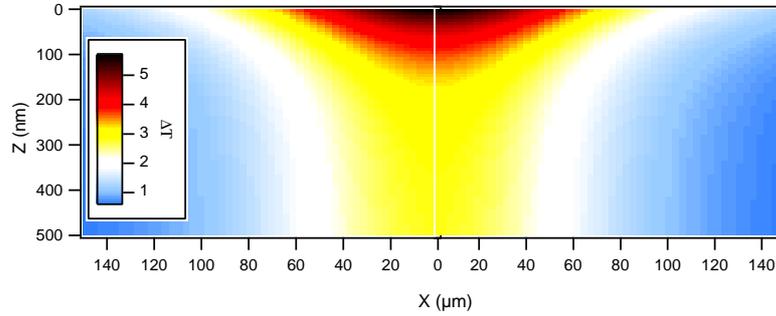


FIGURA 6.1: Profilo del riscaldamento in condizioni stazionarie ottenuto dall'integrazione numerica dell'eq.6.2 per una potenza di laser di 2.5 mW e a una temperatura del superconduttore di 75K

pompa, $\Delta T \propto P_L$. Ciò permette di riscaldare facilmente i risultati dell'integrazione numerica alle varie intensità di eccitazione.

Se si considerano le misure relative ai grafici 5.8 e 5.9 sotto la T_c , possiamo verificare che i risultati della simulazioni spiegano le misure effettuate a diversi repetition rate.

Nel caso di repetition rate a 500 kHz, si verifica una transizione di tipo termico. Dalla simulazione, infatti, vediamo che se la fluena della pompa è $130 \mu J/cm^2$ il riscaldamento medio è di $\sim 7 K$ per cui la temperatura effettiva locale è vicina a T_c ma ancora inferiore (81 K). A una fluena di $260 \mu J/cm^2$ invece la temperatura sale sopra T_c , a 84 K.

Verificata l'accuratezza della simulazione, le T^* sono state utilizzate come temperature locali effettive.

Il riscaldamento di tipo impulsivo (o di non-equilibrio) si manifesta nei picosecondi successivi all'arrivo del singolo impulso sul campione e viene osservato come 'offset' nel $\frac{\Delta R}{R}$ a ritardi superiori ai 15-20 ps. Questo effetto è del tutto trascurabile a fluene di $\sim 5 \mu J/cm^2$ ($\Delta T \sim 0.1 K$) [5], ma lavorando a fluene dell'ordine delle centinaia di $\mu J/cm^2$ può diventare significativo.

Per valutarne l'entità abbiamo confrontato l'offset' ottenuto nelle misure

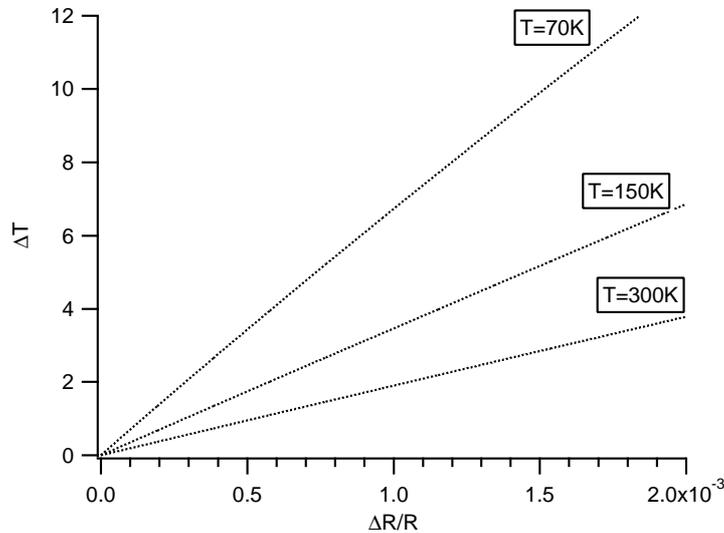


FIGURA 6.2: Variazione di temperatura ΔT del reticolo e variazione di riflettività corrispondente.

pump-probe, con i valori delle misure di riflettività in condizioni d'equilibrio al variare della temperatura (vedi fig.2.5). Il grafico 6.2 riassume i risultati di queste ultime.

Valutando che l'offset osservato alla fluenza massima ottenuta ($970 \mu J/cm^2$ a 150 K) è di $\sim 6 \cdot 10^{-4}$, è possibile concludere che il riscaldamento impulsivo nei primi picosecondi è dell'ordine di qualche grado Kelvin al massimo.

6.2 Possibili effetti di transizioni di fase

Come detto in precedenza, le misure effettuate, in stato di pseudo-gap o in stato superconduttivo, ad alta intensità d'eccitazione, presentano la stessa componente veloce delle misure in stato normale (si veda la figura 6.3 in cui sono messe a confronto le tre curve normalizzate). Ciò significa che le quasi-particelle termalizzano e rilassano nelle prime centinaia di femtosecondi dall'arrivo del pump come se il superconduttore si trovasse in stato normale.

Nel paragrafo 6.1 è stato chiarito che tale osservazione non è legata ad un effetto di riscaldamento locale del campione causato dal laser.

Si è quindi cercato di interpretare le misure come la manifestazione di un collasso della gap nei primi femtosecondi dall'arrivo dell'impulso d'eccitazione. Tale fenomeno è stato teorizzato in letteratura per lo stato superconduttivo adottando il cosiddetto modello μ^* (vedi paragrafo 2.3.2) [26]. La dipendenza della gap superconduttiva in funzione del numero di quasi-particelle foto-indotte è illustrato nella figura 2.7b, mentre la densità di quasi-particelle critica che induce la transizione allo stato normale si trova in figura 2.8.

Come osservato nel paragrafo 5.2, le misure pump-probe nello stato superconduttivo sembrano avere due contributi. Il primo, dominante a basse fluenze, la cui dinamica è associata alla ricombinazione delle quasi-particelle a formare coppie di Cooper (che chiameremo "superconduttivo") e il secondo, dominante ad alte fluenze, che ricalca la dinamica dello stato normale (e chiameremo "normale"). Ad alte intensità il contributo "superconduttivo" è caratterizzato da un "rise time" lungo, dell'ordine di qualche picosecondo.

Per comprendere quale sia il grado di perturbazione del sistema in seguito all'eccitazione e se sia plausibile l'induzione di una transizione di fase, è opportuno stimare il numero di fotoni assorbiti dal sistema. Se consideriamo che ogni fotone venga assorbito causando la rottura di una coppia di Cooper, il numero di quasi-particelle foto-indotte sarà il doppio del numero dei fotoni incidenti. Il laser di pompa ha un'energia $\hbar\omega = 1.5 \text{ eV}$, per cui il numero di fotoni incidenti, per una fluenza ϕ di $1 \mu\text{J}/\text{cm}^2$, è dato dalla densità di energia divisa per $\hbar\omega$

$$n_{qp,i} = 2n_{fotoni} = 2 \times \frac{6 \times 10^{-2} [\frac{J}{\text{cm}^3}]}{1.5[\text{eV}] \cdot 1.9 \times 10^{-19} [\frac{J}{\text{eV}}]} = 5 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3} \quad (6.3)$$

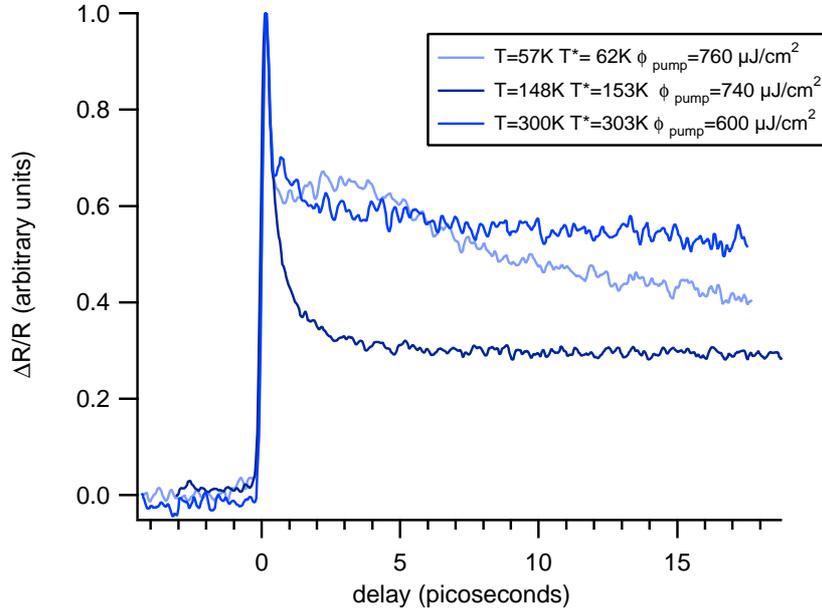


FIGURA 6.3: Variazioni di riflettività normalizzate in funzione del ritardo nelle tre fasi del sistema, stato superconduttivo, di pseudo-gap e normale, in condizioni di forte eccitazione foto-indotta.

assumendo un coefficiente di assorbimento $\alpha = 6 \cdot 10^6 \text{ m}^{-1}$.

Le quasi-particelle create inizialmente sono dotate di un'energia iniziale (1,5 eV) sensibilmente superiore all'energia della gap superconduttiva (massimo $\sim 30 \text{ meV}$). A causa dei processi di scattering elettrone-elettrone ($\tau_{e-e} \sim 10 \text{ fs}$), l'energia in eccesso, pur rimanendo costante, viene distribuita tra un numero sempre maggiore di quasi-particelle. In questa fase di termalizzazione si ha una moltiplicazione a valanga del numero di quasi-particelle. Il numero di fotoni assorbiti rappresenta quindi un limite inferiore per il numero di quasi-particelle foto-indotte.

Per avere una stima più precisa del numero di quasi-particelle foto-indotte, si è fatto uso delle previsioni dei modelli T^* e μ^* [26]. Infatti, se si assume che tutta l'energia dei fotoni venga ceduta al sistema elettronico (assunzione valida per $T \ll T_c$) è possibile ottenere il numero di quasi-particelle dall'eq.2.15

(anch'essa valida per $T \ll T_c$). Tale relazione è stata ricavata nel caso di gap a simmetria "d-wave" per il modello T^* , ma un risultato analogo vale per il modello μ^* . La differenza sostanziale, come detto in 2.3.2, è che il modello μ^* prevede il collasso della gap oltre una soglia critica di quasi-particelle foto-indotte. Per fare uso della relazione 2.15 e per fare eventuali confronti con i risultati illustrati in [26], è stata usata, al posto della fluensa ϕ del fascio di pompa, la sua densità di energia in unità di energia di condensazione ($E_c = N(0)\Delta^2(0)/2$, con $N(0)$ la densità degli stati all'energia di Fermi in stato normale e $\Delta(0)$ la gap a $T=0$ in condizioni d'equilibrio).

Si è quindi proceduto ad una verifica che l'eq.2.15, simuli correttamente i dati sperimentali a $T=21$ K (vedi fig.6.4). Si può notare che ciò avviene per densità di energie inferiori a $1.5 E_c$. A densità d'energia maggiori i dati sperimentali si discostano dall'eq.2.15. Questo può essere causato da un'effetto di spostamento del picco, come osservato nelle fig.5.7 e 5.8, che può produrre l'abbassamento del segnale nella misura di linearità, che viene effettuata a ritardo fissato. Sarebbe quindi necessario analizzare le misure pump-probe complete (a tutti i ritardi), tuttavia non disponiamo di una serie sufficientemente completa di misure a questa temperatura, per analizzare nel dettaglio questa ipotesi.

Tuttavia, è interessante notare che, secondo il modello μ^* nel caso "d-wave", ad un'energia di $\sim 2 E_c$ si verifica la transizione di fase allo stato normale, indicando una possibile relazione tra la deviazione dalla eq.2.15 (e in particolare l'eventuale spostamento del picco "superconduttivo") e l'inizio della transizione di fase.

Uno studio più dettagliato è stato possibile per la serie di misure in prossimità della T_c , a ~ 70 K. In questo caso abbiamo ottenuto l'andamento del contributo a rilassamento lento (3-5 ps), "superconduttivo", dalle misure

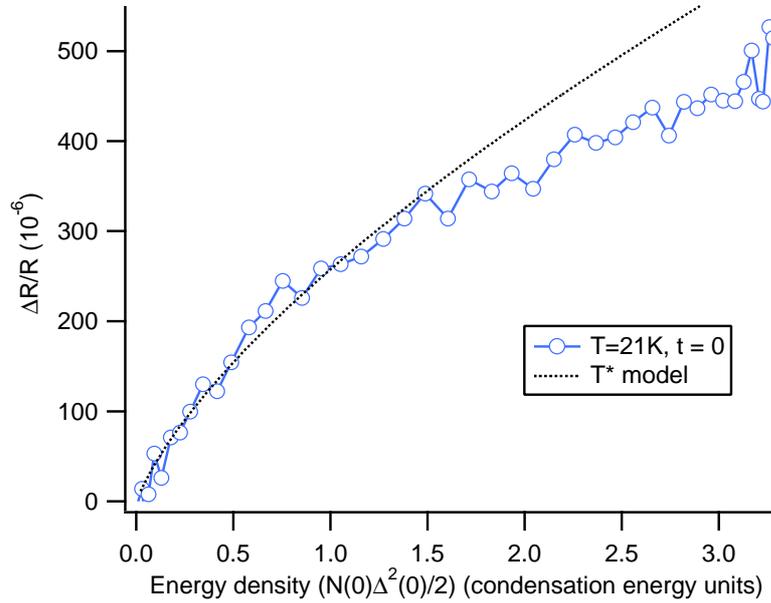


FIGURA 6.4: Stato superconduttivo. Variazione di riflettività a ritardo fissato ($t=0$) in funzione dell'intensità della pompa a $T=21.5$ K. La linea tratteggiata rappresenta il fit ottenuto dalla formula 2.15. Le unità di energia adottate sono quelle usate in [26].

pump-probe complete e quello del picco veloce, "normale", dalle misure di linearità a $t=0$ (vedi fig.6.5).

La componente "normale", la cui pendenza è stata simulata con una retta, non intercetta l'origine degli assi. Ciò può indicare la presenza di una densità d'energia critica oltre cui avviene il collasso della gap superconduttiva. A questa densità d'energia, che corrisponde a $\sim 1 E_c$, si osserva anche la brusca saturazione della componente "superconduttiva", non prevista dal modello T^* [26]. Questo effetto sembra spiegabile nell'ambito del modello μ^* come una manifestazione del collasso della gap superconduttiva.

Infatti, procedendo a una stima del numero di quasi-particelle foto-indotte [26], otteniamo che a questa fluensa si ha la rottura di $\sim 7\%$ di coppie di Cooper, maggiore della soglia prevista per innescare la transizione di fase a

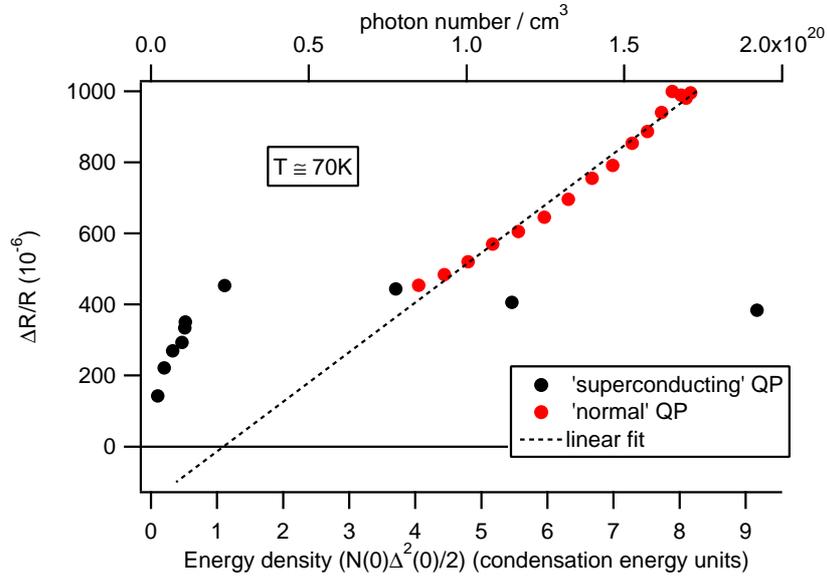


FIGURA 6.5: Stato superconduttivo. I dati in nero sono la variazione di riflettività massima del contributo "superconduttivo" in funzione dell'intensità della pompa. I dati in rosso sono invece una misura di linearità a $t=0$ che indica il picco veloce, associato allo stato normale. Le unità di energia adottate sono quelle usate in [26]. Il fit lineare è stato introdotto per stabilire l'energia critica a cui appare il contributo delle QP "normali".

$T=70\text{ K}$ ($\sim 3\%$) (vedi figura 2.8). In particolare, il fatto che la soglia critica misurata sperimentalmente sia maggiore di quella prevista può essere dovuto al fatto che, vicino alla \mathcal{T}_c , una parte consistente dell'energia viene ceduta al reticolo, come illustrato in [26].

Le misure sembrano quindi compatibili con le previsioni del modello μ^* circa la possibilità di indurre una transizione di fase dallo stato superconduttivo allo stato normale, in cui le quasi-particelle foto-indotte causano il collasso della gap superconduttiva nei primi femtosecondi dall'eccitazione.

Capitolo 7

Conclusione

Il presente lavoro riporta uno studio della dinamica di rilassamento delle quasi-particelle in un superconduttore ad alta temperatura critica ($\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_1\text{Cu}_2\text{O}_{8+\delta}$), mediante la tecnica ottica di pump-probe. La condizione di non-equilibrio è indotta nel sistema con un impulso laser di durata temporale di 120 fs ed un'energia di 1,5 eV. In condizioni di debole eccitazione la dinamica osservata cambia sensibilmente a seconda dello stato del superconduttore (normale, superconduttivo o di 'pseudo-gap'). Le misure sono state messe a confronto con altri lavori di letteratura [2, 37] e con i modelli interpretativi comunemente accettati [21, 40]. Nello stato normale la dinamica osservata è stata interpretata come una manifestazione del rilassamento elettronico per interazione elettrone-fonone, mentre nello stato superconduttivo come la ricombinazione delle quasi-particelle a formare coppie di Cooper. È tuttora assente un modello per interpretare le misure in stato di pseudo-gap.

Nel caso superconduttivo e di pseudo-gap la risposta del sistema è altamente non-lineare al variare dell'intensità dell'eccitazione. Dall'analisi dei dati sperimentali sono state effettuate le seguenti osservazioni:

- comparsa di un picco veloce nel regime di forte eccitazione, la cui

dinamica di rilassamento ricalca quella dello stato normale

- distinzione degli effetti di riscaldamento stazionario dagli effetti impulsivi foto-indotti, chiarendo il cambio di dinamica osservato non è da attribuire a una transizione di tipo termico
- individuazione di una densità di energia critica per la comparsa del picco "normale"

Per spiegare i risultati sperimentali è stata studiata in dettaglio l'ipotesi di una transizione di fase foto-indotta dallo stato superconduttivo allo stato normale, associata al collasso della gap superconduttiva, come previsto dal modello μ^* di Owen e Scalapino [25].

Tuttavia, per verificare definitivamente la correttezza delle previsioni di tale modello è necessario ripetere le misure alle temperature più basse ($T \ll T_c$). La possibilità di indurre una transizione di fase dallo stato superconduttivo allo stato normale in qualche centinaio di femtosecondi può aprire la strada allo studio della dinamica di ricostituzione della superconduttività, gettando nuova luce sull'origine di tale fenomeno. Oltre allo studio di queste dinamiche, le prospettive future del presente lavoro di tesi sono l'utilizzo di una sorgente di luce dotata di un ampio spettro di frequenze, dal vicino infrarosso fino all'ultravioletto, permettendo il confronto diretto con vari modelli proposti in letteratura [12], e lo studio delle proprietà magnetiche in condizioni di non-equilibrio mediante tecniche ottiche.

Bibliografia

- [1] A. Damascelli, Z. Hussain, and Z. Shen, *Rev. Mod. Phys.* **75**, 473 (2003).
- [2] N. Gedik, M. Langner, and J. Orenstein, *Phys. Rev. Lett.* **95**, 117005 (2005).
- [3] N. Gedik et al., *Phys. Rev. B* **70**, 014504 (2004).
- [4] J. Demsar et al., *Phys. Rev. Lett.* **82**, 4918 (1999).
- [5] D. Mihailovic and J. Demsar, *ACS Symposium Series* **730**, .
- [6] N. F. Mott, *Metal Insulator Transitions* (Taylor and Francis, London, 1990).
- [7] C. C. Tsuei and J. R. Kirtley, *Rev. Mod. Phys.* **72**, 969 (2000).
- [8] D. Basov and T. Timusk, *Rev. Mod. Phys.* **77**, 721 (2005).
- [9] N. W. Ashcroft and N. D. Mermin, *Solid State Physics* (Holt, Rinehart and Winston, New York, 1976).
- [10] D. Smith, *Handbook of optical constants of solids* (Academic Press New York, New York, 1998), pag.35.
- [11] H. Molegraaf, C. Presura, D. van der Marel, P. Kes, and M. Li, *Science* **295**, 2239 (2002).

-
- [12] A. Kuzmenko, H. Molegraaf, F. Carbone, and D. van der Marel, Phys. Rev. B **72**, 144503 (2005).
- [13] A. V. Boris et al., Science **304**, 708 (2004).
- [14] J. Hwang et al., Phys. Rev. B **69**, 094520 (2004).
- [15] A. Toschi, (unpublished) **cond-mat/0502528**, .
- [16] P. B. Allen, Phys. Rev. Lett. **59**, 1460 (1987).
- [17] S. Anisimov et al., Sov. Phys. JETP **39**, 375 (1975).
- [18] W. McMillan et al., Phys. Rev. **167**, 331 (1968).
- [19] S. Brorson et al., Phys. Rev. Lett. **64**, 2172 (1990).
- [20] R. Groeneveld et al., Phys. Rev. B **45**, 5079 (1992).
- [21] A. Rothwarf and B. Taylor, Phys. Rev. Lett. **19**, 27 (1967).
- [22] N. Gedik, J. Orenstein, R. Liang, D. Bonn, and W. Hardy, Science **300**, 1410 (2003).
- [23] V. Kabanov, D. Mihailovic, and J. Demsar, Phys. Rev. Lett. **95**, 147002 (2005).
- [24] W. Parker, Phys. Rev. B **12**, 3667 (1975).
- [25] C. Owen and D. Scalapino, Phys. Rev. Lett. **28**, 1559 (1972).
- [26] E. Nicol and J. Carbotte, Phys. Rev. B **67**, 214506 (2003).
- [27] M. Cesaretti, Master's thesis, .
- [28] R. Gladyshevskii and R. Flukiger, Acta Cryst. B **52**, 38 .
-

-
- [29] J. Whitler and R. Roth, *Phase Diagrams for High-Tc Superconductors* (The American Ceramic Society, Westerville, Ohio, 1991).
- [30] A. Revcolevschi and J. Jegoudez, *Coherence in High Temperature Superconductors* (World scientific, Singapore, New Jersey, London, Hong Kong, 1995).
- [31] C. Ye et al., Chin Phys Lett **8**, 521 (1991).
- [32] M. Crommie and A. Zettl, Phys. Rev. B **43**, 408 (1991).
- [33] G. Deutscher, *Coherence in High Temperature Superconductors* (World scientific, Singapore, New Jersey, London, Hong Kong, 1995).
- [34] J. Emmen, S. Lenczowski, J. Dalderop, and V.A.M. Brabers, J. Crystal Growth **118**, 477 (1992).
- [35] ICSD, using POWD12++, 1997.
- [36] A. Grigorenko et al., Nature **414**, 728 (2001).
- [37] S. Brorson et al., Solid State Commun. **74**, 1305 (1990).
- [38] <http://www.ape-berlin.de/pdf/CavityDumper-PulseSwitch-CD.pdf>.
- [39] G. R. Fowles, *Introduction to Modern Optics* (Dover Publication, New York, 1989).
- [40] A. Frenkel, Phys. Rev. B **48**, 9717 (1993).
- [41] P. Gay et al., J. Low Temp. Phys. **117**, 1025 (1999).
- [42] D. Smith et al., Physica C **341**, 2221 (2000).
- [43] S. Han et al., PRL **65**, 2708 (1990).
-

- [44] H. Carslaw and J. Jaeger, *Conduction of heat in solids* (Oxford University Press, Oxford, 1985).

Ringraziamenti

Con questa tesi si chiude un capitolo importante della mia vita, uno di quei capitoli che vorresti non finissero mai per quanto sono ricchi di esperienze e di amicizie. Sono riconoscente a tutti quelli che mi sono stati vicini in questi anni, ognuno di voi mi ha dato qualcosa. Vorrei potervi ringraziare e salutare tutti ma sicuramente non riuscirò a farlo in poche righe.

Il primo grazie va ai miei genitori che, nonostante la mia impertinza adolescenziale, mi hanno pazientemente sostenuto e hanno sempre creduto in me. Vi voglio bene. Grazie anche a mio fratello che, da bravo fratello maggiore, mi ha sempre mostrato le cose da due passi avanti, aiutandomi nelle decisioni difficili.

Sono riconoscente al prof. Parmigiani per aver riposto fiducia in me e per avermi permesso di compiere il primo passo di un progetto molto ambizioso. Grazie a lui ho potuto collaborare in questi mesi con Claudio, che ringrazio in modo particolare per la pazienza e la passione con cui mi ha seguito in questo lavoro di tesi. Ringrazio Francesco e Marco che mi hanno ospitato e aiutato durante gli esperimenti svolti a Ginevra. È un piacere lavorare con persone che mettono passione in quello che studiano.

Grazie a "casa Ardessi" e a tutti gli amici che ci sono passati e continueranno a passarci. Elencarvi sarebbe riduttivo, "savè che ve voio ben!".

Una tappa importante della mia formazione umana e scientifica è stato il periodo passato a Leiden, in Olanda. Lì ho vissuto delle esperienze indimenticabili e ho avuto modo di conoscere persone eccezionali. Devo ringraziare Andrea che ha reso possibile quella mia avventura.

Saluto e ringrazio i Trabant per non avermi cacciato mentre ero in Olanda e ricordo loro che in fisica come in musica

"È tutta una questione di frequenze!"