



Centro de Investigaciones en Óptica, A.C.

*Taller teórico-práctico: Nanotecnología y óptica de altas
intensidades
Óptica no lineal en sistemas confinados*

Norberto Arzate Plata

narzate@cio.mx

<http://aida.cio.mx/~narzate/pwp/Site/Welcome.html>

24-28 de Agosto del 2015

Contenido

Sistemas confinados

Susceptibilidades lineal y no lineal

Objetivos

- **Dar a conocer sistemas confinados de pozo de potencial.**
- **Dar a conocer el formalismo de para el cálculo de las susceptibilidades lineal y no lineal en la representación de interacción.**
- **Dar a conocer los pasos a seguir para el calculo de las susceptibilidades lineal y no lineal para un pozo de potencial.**

Semiconductores

Un material semiconductor es un cristal que puede comportarse bajo ciertas condiciones como conductor o aislante, dependiendo de la intensidad de los campos eléctricos o magnéticos externos o de la temperatura.

Elementos semiconductores: Si, Ge, B, As, Sb, Te, etc.

Compuestos binarios semiconductores: GaAs, InSb, AlP, etc.

Compuestos ternarios semiconductores: AlGaAs, InGaAs, etc.

TABLA PERIÓDICA DE LOS ELEMENTOS

<http://www.periodni.com/es/>

PERIODO	1	1	2	13	10,811	13	14	15	16	17	18							
	1	IA	IIA	IIIA	GRUPO IUPAC	GRUPO CAS	5	6	7	8	9	10						
	1	H										He						
	2	3	4															
	2	Li	Be															
	2	3	4															
	2	Li	Be															
3	11	12																
3	Na	Mg																
3	11	12																
3	Na	Mg																
4	19	20	21	22	23	24	25	26	27	28	29	30	31	32	33	34	35	36
4	K	Ca	Sc	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Co	Ni	Cu	Zn	Ga	Ge	As	Se	Br	Kr
4	19	20	21	22	23	24	25	26	27	28	29	30	31	32	33	34	35	36
4	K	Ca	Sc	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Co	Ni	Cu	Zn	Ga	Ge	As	Se	Br	Kr
5	37	38	39	40	41	42	43	44	45	46	47	48	49	50	51	52	53	54
5	Rb	Sr	Y	Zr	Nb	Mo	Tc	Ru	Rh	Pd	Ag	Cd	In	Sn	Sb	Te	I	Xe
5	37	38	39	40	41	42	43	44	45	46	47	48	49	50	51	52	53	54
5	Rb	Sr	Y	Zr	Nb	Mo	Tc	Ru	Rh	Pd	Ag	Cd	In	Sn	Sb	Te	I	Xe
6	55	56	57-71	72	73	74	75	76	77	78	79	80	81	82	83	84	85	86
6	Cs	Ba	La-Lu	Hf	Ta	W	Re	Os	Ir	Pt	Au	Hg	Tl	Pb	Bi	Po	At	Rn
6	55	56	57-71	72	73	74	75	76	77	78	79	80	81	82	83	84	85	86
6	Cs	Ba	La-Lu	Hf	Ta	W	Re	Os	Ir	Pt	Au	Hg	Tl	Pb	Bi	Po	At	Rn
7	87	88	89-103	104	105	106	107	108	109	110	111	112	113	114	115	116	117	118
7	Fr	Ra	Ac-Lr	Rf	Db	Sg	Bh	Hs	Mt	Ds	Rg	Cn	Uut	Fl	Uup	Lv	Uus	Uuo
7	87	88	89-103	104	105	106	107	108	109	110	111	112	113	114	115	116	117	118
7	Fr	Ra	Ac-Lr	Rf	Db	Sg	Bh	Hs	Mt	Ds	Rg	Cn	Uut	Fl	Uup	Lv	Uus	Uuo

MASA ATÓMICA RELATIVA (1)

GRUPO IUPAC

GRUPO CAS

NÚMERO ATÓMICO

SÍMBOLO

NOMBRE DEL ELEMENTO

ESTADO DE AGREGACIÓN (25 °C)

Ne - gaseoso Fe - sólido
Hg - líquido Tc - sintético

- Metales
- Semimetales
- No metales
- Metales alcalinos
- Metales alcalinoteros
- Elementos de transición
- Lantánidos
- Actinidos
- Anfígenos
- Halógenos
- Gases nobles

(1) Pure Appl. Chem., 81, No. 11, 2131-2156 (2009)
Las masas atómicas relativas se expresada con cinco cifras significativas. El elemento no tiene núcleos estables. El valor encerrado en paréntesis, por ejemplo [209], indica el número de masa de más larga vida del elemento. Sin embargo tres de tales elementos (Th, Pa y U) tienen una composición isotópica terrestre característica, y para estos es tabulado un peso atómico.

LANTÁNIDOS

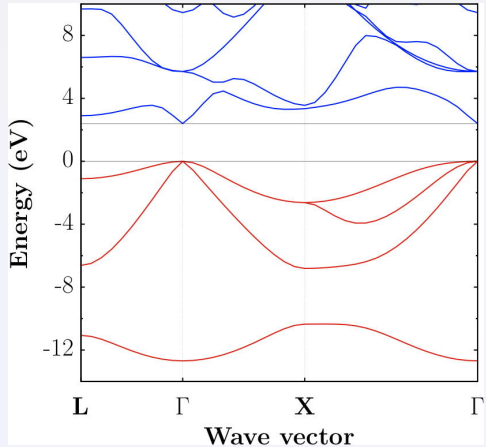
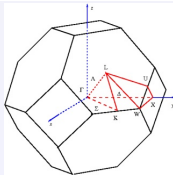
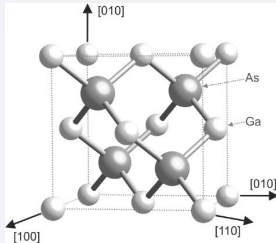
57	58	59	60	61	62	63	64	65	66	67	68	69	70	71
La	Ce	Pr	Nd	Pm	Sm	Eu	Gd	Tb	Dy	Ho	Er	Tm	Yb	Lu
LANTANO	CERIO	PRASEODIMIO	NEODIMIO	PROMETIO	SAMARIO	EUROPIO	GADOLINIO	TERBIO	DISPROSIO	HOLMIO	ERBIO	TULIO	YTERBIO	LUTECIO

ACTINIDOS

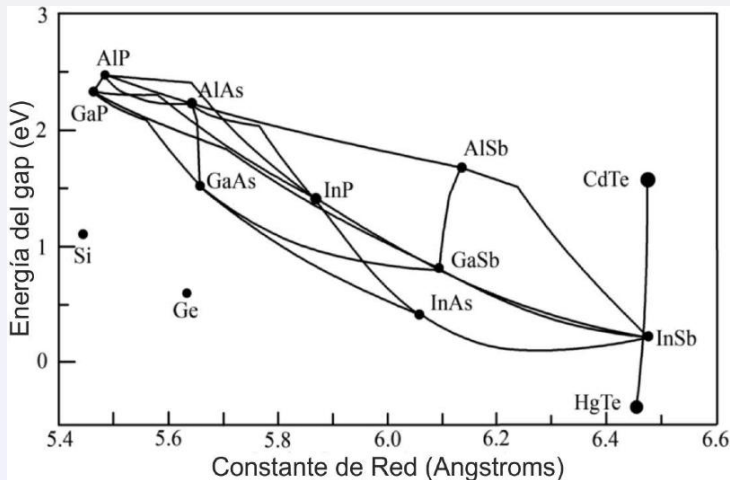
89	90	91	92	93	94	95	96	97	98	99	100	101	102	103
Ac	Th	Pa	U	Np	Pu	Am	Cm	Bk	Cf	Es	Fm	Md	No	Lr
ACTINIO	TORIO	PROTACTINIO	URANIO	NEPTUNIO	PLUTONIO	AMERICIO	CURIO	BERKELIO	CALIFORNIO	EINSTEINIO	FERMIO	MENDELEVI	NOBELIO	LAWRENCIO

Estructura de bandas de GaAs

Constante de red: $a_0 = 5.65 \text{ \AA}$

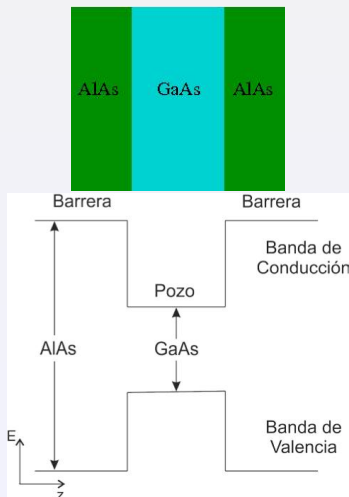


Brecha de energía Vs constante de red



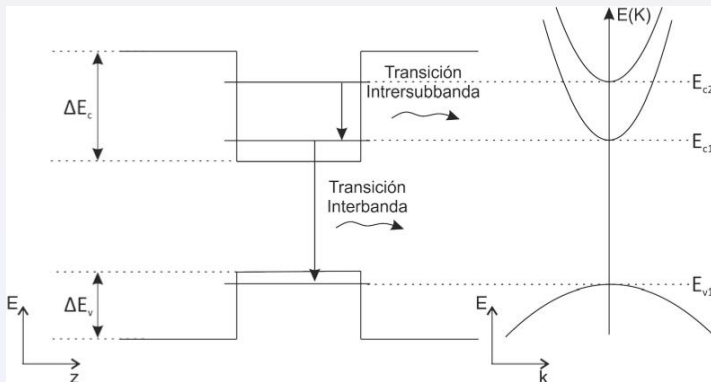
Referencia: J.V. González Fernández, Espectroscopias ópticas y su aplicación para el estudio de nanoestructuras, Tesis de Doctorado, 2015.

Pozo de potencial



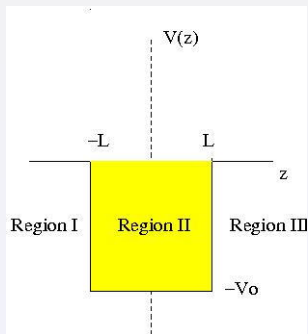
Referencia: J.V. González Fernández, Espectroscopias ópticas y su aplicación para el estudio de nanoestructuras, Tesis de Doctorado, 2015.

Transiciones



Referencia: J.V. González Fernández, Espectroscopias ópticas y su aplicación para el estudio de nanoestructuras, Tesis de Doctorado, 2015.

Pozo de potencial finito



Potencial de un pozo finito

$$V = \begin{cases} -V_0 & -L < x < L \\ 0 & x < -L; x > L. \end{cases} \quad (1)$$

Funciones de onda

$$\Psi_{II}(z) = A_1 e^{k_1 z}, \quad (2)$$

$$\Psi_{II}(z) = A_2 \cos(k_1 z) + B_2 \sin(k_2 z), \quad (3)$$

$$\Psi_{II}(z) = B_3 e^{-k_1 z} \quad (4)$$

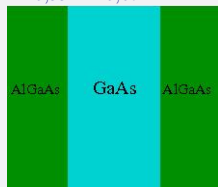
Soluciones simétrica y antisimétrica, respectivamente:

$$(k_2 L)^2 + (k_1 L)^2 = r^2 \quad k_1 L = k_2 L \tan(k_2 L), \quad (5)$$

$$(k_2 L)^2 + (k_1 L)^2 = r^2 \quad k_1 L = -k_2 L \cot(k_2 L), \quad (6)$$

con $r^2 = \frac{2mV_0L^2}{\hbar^2}$.

Pozo de potencial finito



$$V_0 = 255 \text{ meV};$$

$$2L = 54 \text{ \AA};$$

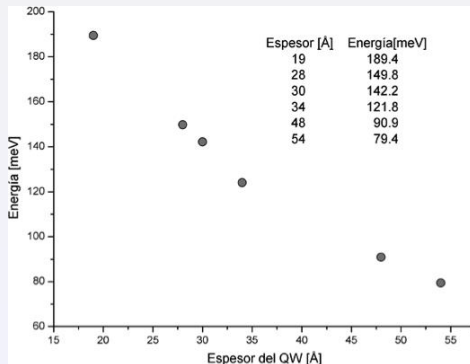
$$m_{eff}^{barrera} = 0.09 m_e;$$

$$m_{eff}^{pozo} = 0.63 m_e;$$

$$N_e = 1 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$$

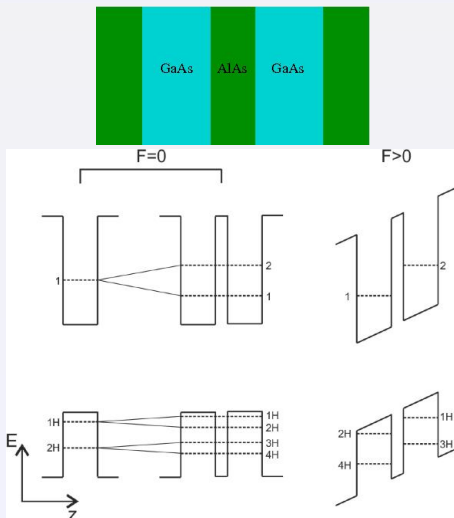
$$E_1 = 79 \text{ meV};$$

$$E_2 = 249 \text{ meV};$$



Referencia: J.V. González Fernández, Espectroscopias ópticas y su aplicación para el estudio de nanoestructuras, Tesis de Doctorado, 2015.

Doble pozo de potencial



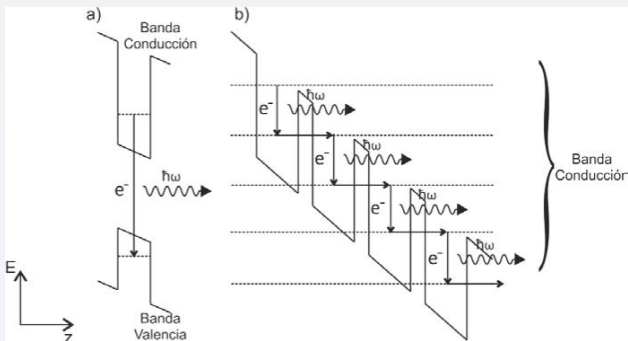
Referencia: J.V. González Fernández, Espectroscopias ópticas y su aplicación para el estudio de nanoestructuras, Tesis de Doctorado, 2015.

Pozos dobles

Aplicaciones

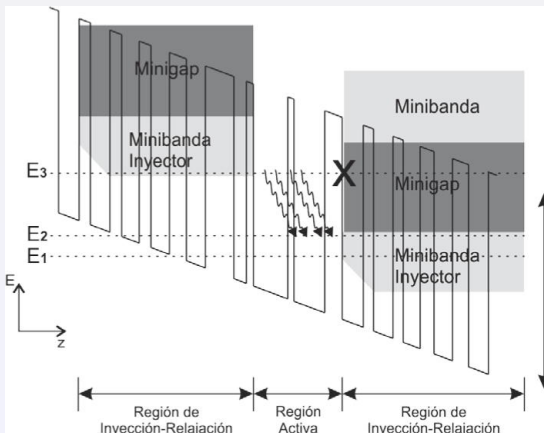
- **Dispositivos de emisión y absorción (IR,THz).**
- **Dispositivos láseres, láseres de cascada cuántica (THz).**
- **Detectores.**
- **Transistores.**
- **Sensores.**

Láser de cascada cuántica



Referencia: J.V. González Fernández, Espectroscopias ópticas y su aplicación para el estudio de nanoestructuras, Tesis de Doctorado, 2015.

Láser de cascada cuántica



Referencia: J.V. González Fernández, Espectroscopias ópticas y su aplicación para el estudio de nanoestructuras, Tesis de Doctorado, 2015.

Polarización

La polarización en el sistema CGS esta dado por

$$\begin{aligned}\tilde{\mathbf{P}}(t) &= \alpha^{(1)}\tilde{\mathbf{E}}(t) + \chi^{(2)}\tilde{\mathbf{E}}(t)\tilde{\mathbf{E}}(t) + \Gamma^{(2)}\tilde{\mathbf{E}}(t)\nabla\tilde{\mathbf{E}}(t) + \chi^{(3)}\tilde{\mathbf{E}}(t)\tilde{\mathbf{E}}(t)\tilde{\mathbf{E}}(t) + \dots \\ &= \tilde{\mathbf{P}}^{(1)}(t) + \tilde{\mathbf{P}}^{(2)}(t) + \tilde{\mathbf{P}}^{(3)}(t) + \dots\end{aligned}\quad (7)$$

La polarización en el sistema MKS, se obtiene multiplicando la ecuación (7) por ϵ_0 .

$$\tilde{P}_i(t) = \alpha_{ij}^{(1)}\tilde{E}_j(t) + \chi_{ijk}^{(2)}\tilde{E}_j(t)\tilde{E}_k(t) + \Gamma_{ijkl}^{(2)}\tilde{E}_j(t)\nabla_k\tilde{E}_l(t) + \chi_{ijkl}^{(3)}\tilde{E}_j(t)\tilde{E}_k(t)\tilde{E}_l(t) + \dots\quad (8)$$

$\alpha^{(1)}$ **Susceptibilidad lineal (emisión y absorción)**

$\chi^{(2)}, \Gamma^{(2)}$ **Generación de segundo armónico
suma y resta de frecuencias,...**

$\chi^{(3)}$ **Tercer armónico.**

Estimaciones

$$\alpha^{(1)} \sim 1$$

$$\chi^{(2)} \sim 1/E_{at} \approx 1,94 \times 10^{-12} \text{ m/V} \approx 6 \times 10^{-8} \text{ cm/statvolt}$$

$$\Gamma^{(2)} \sim a_0/E_{at} \approx 10^{-22} \text{ m}^2/\text{V} \approx 3 \times 10^{-18} \text{ cm}^2/\text{statvolt}$$

$$\chi^{(3)} \sim \alpha^{(1)}/E_{at}^2 \approx 3,78 \times 10^{-24} \text{ m}^2/\text{V}$$

$$E_{at} = 5,14 \times 10^{11} \text{ V/m}$$

$$a_0 = \mathbf{0.529 \text{ \AA}}$$

CGS - MKS

CGS

$$[\tilde{P}] = [\tilde{E}] = \text{statvolt/cm}$$

$\chi^{(1)}$ es adimensional

$$[\chi^{(2)}] = [1/\tilde{E}] = \text{cm/statvolt}$$

$$[\Gamma^{(2)}] = [a_0/\tilde{E}] = \text{cm}^2/\text{statvolt}$$

$$[\chi^{(3)}] = [1/\tilde{E}^2] = \text{cm}^2/\text{statvolt}^2$$

MKS

$$[\tilde{P}] = \text{C/m}^2$$

$$[\tilde{E}] = \text{V/m}$$

$\chi^{(1)}$ es adimensional

$$[\chi^{(2)}] = [1/\tilde{E}] = \text{m/V}$$

$$[\Gamma^{(2)}] = [a_0/\tilde{E}] = \text{m}^2/\text{V}$$

$$[\chi^{(3)}] = [1/\tilde{E}^2] = \text{m}^2/\text{V}^2$$

Conversión

$$\tilde{E} \text{ (MKS)} = 3 \times 10^4 \tilde{E} \text{ (CGS)}$$

$$\chi^{(1)} \text{ (MKS)} = 4\pi \chi^{(1)} \text{ (CGS)}$$

$$\chi^{(2)} \text{ (MKS)} = 4.189 \times 10^{-4} \chi^{(2)} \text{ (CGS)}$$

$$\Gamma^{(2)} \text{ (MKS)} = 4.189 \times 10^{-6} \Gamma^{(2)} \text{ (CGS)}$$

$$\chi^{(3)} \text{ (MKS)} = 1.40 \times 10^{-8} \chi^{(3)} \text{ (CGS)}$$

Problema mecánico cuántico

El hamiltoniano total de un sistema mecánico cuántico puede escribirse como

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{H}', \quad (9)$$

donde el hamiltoniano no perturbado, \hat{H}_0 , satisface la ecuación de Schrödinger

$$i\hbar \frac{d\Psi(t)}{dt} = \hat{H}_0 \Psi(t). \quad (10)$$

\hat{H}' es el hamiltoniano de perturbación.

Representación de interacción

Las correcciones a primer orden y segundo en el valor de expectación de una cantidad física \hat{O} debido a la perturbación \hat{H}' son respectivamente:

$$\delta \hat{O}^{(1)}(t) = \frac{1}{i\hbar} \text{tr} \left\{ \rho_0 \int_{-\infty}^t dt_1 [\hat{O}(t), \hat{H}'(t_1)] \right\} \quad (11)$$

$$\delta \hat{O}^{(2)}(t) = \frac{1}{(i\hbar)^2} \text{tr} \left\{ \rho_0 \int_{-\infty}^t dt_1 \int_{-\infty}^{t_1} dt_2 [[\hat{O}(t), \hat{H}'(-t_1)], \hat{H}'(-t_2)] \right\}, \quad (12)$$

(13)

donde ρ_0 es la matriz de densidad no perturbada.

Para el momento dipolar eléctrico tenemos

$$\hat{p}_i = e\hat{x}_i, \quad (14)$$

y el momento cuadrupolar eléctrico

$$\hat{Q}_{ij} = e\hat{x}_i\hat{x}_j, \quad (15)$$

donde, el operador de posición dependiente del tiempo se escribe

$$\hat{x}(t) = e^{(i\hat{H}_0 t)} x e^{(-i\hat{H}_0 t)}. \quad (16)$$

Las perturbaciones a primer y segundo orden son respectivamente:

$$\hat{H}' = e\hat{x}_j E_j \quad (17)$$

$$\hat{H}' = e\hat{x}_j E_j + \frac{1}{2} e\hat{x}_j \hat{x}_k \nabla_j E_k \quad (18)$$

$$(19)$$

donde se asume la convección de suma de Einstein sobre índices repetidos.

Las correcciones a primer orden a la susceptibilidad se obtiene sustuyendo las ecuaciones (17) en (11)

$$\alpha_{ij} = \frac{Ne^2}{(i\hbar)} \text{tr} \left\{ \rho_0 \int_{-\infty}^0 dt [\hat{x}_i(t), \hat{x}_j] e^{i\omega t} \right\} \quad (20)$$

Desarrollando el conmutador de la ecuación (20), encorchetandolo entre los estados $\langle n|$ y $|m\rangle$ y teniendo en cuenta las relaciones

$$\langle n| e^{(i\hat{H}_0 t/\hbar)} = e^{i\hat{E}_n t/\hbar}, \quad (21)$$

$$e^{(i\hat{H}_0 t/\hbar)} |n\rangle = e^{-i\hat{E}_n t/\hbar}, \quad (22)$$

$$|p\rangle \langle p| = 1. \quad (23)$$

Obtenemos

$$\alpha_{ij} = \frac{-Ne^2}{i\hbar} \text{tr} \left\{ \rho_0 \sum_{np} \left[\langle \hat{x}_i \rangle_{np} \langle \hat{x}_j \rangle_{pn} \int_{-\infty}^0 e^{i(\omega + \omega_{np})t} dt \right. \right. \\ \left. \left. - \langle \hat{x}_j \rangle_{np} \langle \hat{x}_i \rangle_{pn} \int_{-\infty}^0 e^{i(\omega + \omega_{pn})t} dt \right] \right\} \quad (24)$$

$$\alpha_{ij}(\omega) = \alpha_0 \tilde{\alpha}_{ij}(\tilde{\omega}), \quad (25)$$

donde

$$\tilde{\alpha}_{ij}(\tilde{\omega}) = \sum_{np} \left(\frac{\langle \hat{X}_i \rangle_{np} \langle \hat{X}_j \rangle_{pn}}{\tilde{\omega}_{np} + \tilde{\omega}} + \frac{\langle \hat{X}_j \rangle_{np} \langle \hat{X}_i \rangle_{pn}}{\tilde{\omega}_{np} - \tilde{\omega}} \right) \quad (26)$$

con

$$\alpha_0 = \frac{Ne^2 L^2}{\hbar \omega'}. \quad (27)$$

N es la densidad de estados, e es la carga del electrón, L es una longitud de normalización del orden de la longitud de onda de De Broglie.

Los valores de expectación de la posición se calculan a través de la expresión.

$$\langle \hat{x}_i \rangle_{nm} = \int_{-\infty}^{\infty} \Psi(\mathbf{r})^* \hat{x}_i \Psi(\mathbf{r}) d\mathbf{r}. \quad (28)$$

y

$$\begin{aligned} \tilde{\omega} &= \omega/\omega, \\ \omega_{np} &= \tilde{\omega}_{np}/\omega', \\ \omega_{np} &= \omega_p - \omega_n, \\ \omega' &= \omega_2 - \omega_1. \end{aligned} \quad (29)$$

Susceptibilidad cuadrática

Polarizabilidad a segundo orden para sistemas no centrosimétricos:

$$\begin{aligned}
 \tilde{\chi}_{ijk}^{(2)}(\tilde{\omega}) = \chi_0 \sum_{npq} & \left(\frac{\langle \hat{X}_i \rangle_{np} \langle \hat{X}_j \rangle_{pq} \langle \hat{X}_k \rangle_{qn}}{(\tilde{\omega}_{pn} - 2\tilde{\omega})(\tilde{\omega}_{qn} - \tilde{\omega})} \right. \\
 & + \frac{\langle \hat{X}_i \rangle_{np} \langle \hat{X}_j \rangle_{pq} \langle \hat{X}_k \rangle_{qn}}{(\tilde{\omega}_{pn} + \tilde{\omega})(\tilde{\omega}_{qn} - \tilde{\omega})} \\
 & \left. + \frac{\langle \hat{X}_i \rangle_{np} \langle \hat{X}_j \rangle_{pq} \langle \hat{X}_k \rangle_{qn}}{(\tilde{\omega}_{pn} + \tilde{\omega})(\tilde{\omega}_{pn} + 2\tilde{\omega})} \right) \quad (30)
 \end{aligned}$$

$$\chi_0 = \frac{Ne^3 L^3}{2\hbar^2 \omega'^2}, \quad (31)$$

Susceptibilidad cuadrática

Polarizabilidad a segundo orden para sistemas centrosimétricos

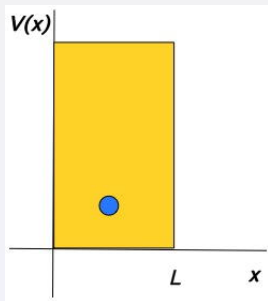
$$\Gamma_{ij}(\omega) = \Gamma_0 \tilde{\Gamma}_{ij}(\tilde{\omega}), \quad (32)$$

donde

$$\begin{aligned} \tilde{\Gamma}_{ijkl}(\tilde{\omega}) = & - \sum_{npqr} \left(\frac{\langle \hat{X}_i \rangle_{np} \langle \hat{X}_j \rangle_{pq} \langle \hat{X}_k \rangle_{qr} \langle \hat{X}_l \rangle_{rn}}{2\tilde{\omega} - \tilde{\omega}_{pn}} \left[\frac{1}{\tilde{\omega} - \tilde{\omega}_{qn}} + \frac{1}{\tilde{\omega} - \tilde{\omega}_{rn}} \right] \right. \\ & - \frac{\langle \hat{X}_i \rangle_{np} \langle \hat{X}_j \rangle_{pq} \langle \hat{X}_k \rangle_{qr} \langle \hat{X}_l \rangle_{rn}}{2\tilde{\omega} - \tilde{\omega}_{qp}} \left[\frac{1}{\tilde{\omega} - \tilde{\omega}_{qn}} + \frac{1}{\tilde{\omega} - \tilde{\omega}_{np}} \right] \\ & - \frac{\langle \hat{X}_i \rangle_{np} \langle \hat{X}_j \rangle_{pq} \langle \hat{X}_k \rangle_{qr} \langle \hat{X}_l \rangle_{rn}}{2\tilde{\omega} - \tilde{\omega}_{rq}} \left[\frac{1}{\tilde{\omega} - \tilde{\omega}_{nq}} + \frac{1}{\tilde{\omega} - \tilde{\omega}_{rn}} \right] \\ & \left. + \frac{\langle \hat{X}_i \rangle_{np} \langle \hat{X}_j \rangle_{pq} \langle \hat{X}_k \rangle_{qr} \langle \hat{X}_l \rangle_{rn}}{2\tilde{\omega} - \tilde{\omega}_{nr}} \left[\frac{1}{\tilde{\omega} - \tilde{\omega}_{nq}} + \frac{1}{\tilde{\omega} - \tilde{\omega}_{np}} \right] \right) \end{aligned} \quad (33)$$

$$\Gamma_0 = \frac{Ne^3 L^4}{2\hbar^2 \omega'^2}, \quad (34)$$

Pozo de potencial unidimensional



Funciones de onda

Potencial de un pozo infinito

$$V = \begin{cases} 0 & 0 < x < L \\ \infty & x = 0; x = L. \end{cases} \quad (35)$$

$$\Psi_n = \sqrt{\frac{2}{L}} \sin\left(\frac{n\pi}{L}x\right). \quad (36)$$

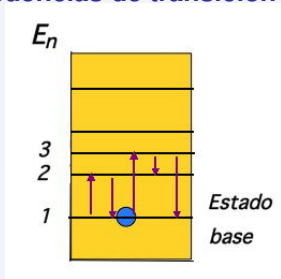
Energías permitidas

$$E_n = \hbar\omega_n = \frac{\pi^2 \hbar^2}{2mL^2} n^2. \quad (37)$$

Valor de expectación de la posición

$$\begin{aligned}
 \langle \hat{x} \rangle_{nm} &= \frac{2}{L} \int_0^L \sin\left(\frac{n\pi}{L}x\right)x \sin\left(\frac{m\pi}{L}x\right)dx \\
 &= \frac{-mn}{(m^2 - n^2)^2} + \frac{(-1)^{m+n}mn}{(m^2 - n^2)^2} \quad (38)
 \end{aligned}$$

Frecuencias de transición



$$\begin{aligned}
 \omega_{np} &= \omega_p - \omega_n \\
 &= \frac{\pi^2 \hbar}{2mL^2} (p^2 - n^2). \quad (39)
 \end{aligned}$$

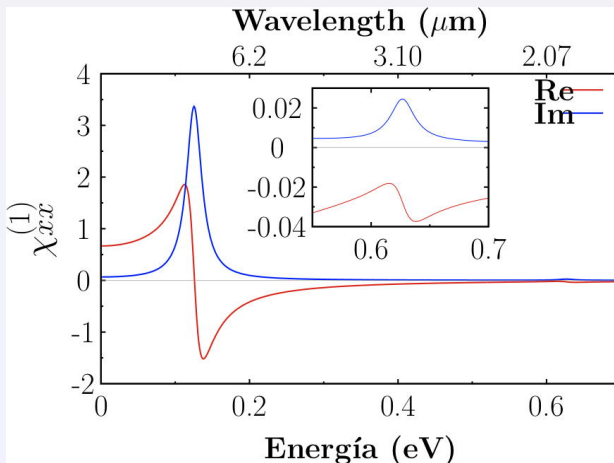
¿Qué se requiere para el cálculo de las susceptibilidades?

- **Funciones de onda del sistema:** $\Psi_n(\mathbf{r})$.
- **Estados energéticos del sistema:** E_n .
- **Evaluar los elementos de matriz de la posición:** $\langle n|\hat{x}|m \rangle$
- **Evaluar los términos involucrados en las expresiones respectivas de las susceptibilidades sobre todos los estados del sistema.**

Susceptibilidad lineal

Susceptibilidad lineal de un pozo infinito.

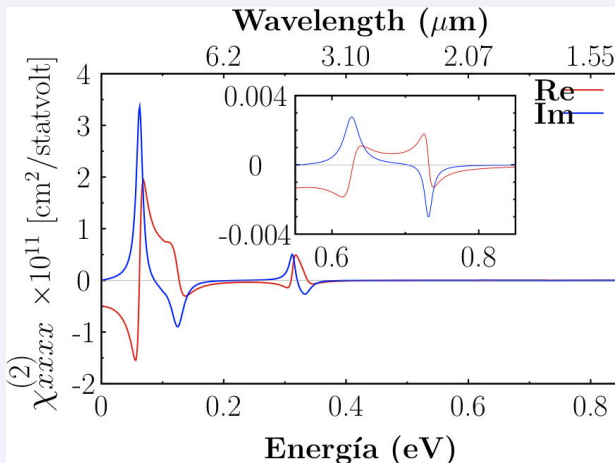
$L = 30 \text{ \AA}$; $N_e = 10^{20} \text{ cm}^{-3}$.



Susceptibilidad no lineal

Susceptibilidad lineal de un pozo infinito.

$L = 30 \text{ \AA}$; $N_e = 10^{20} \text{ cm}^{-3}$.



Infraestructura

“Cluster” de cómputo

- 14 nodos *quad-core* duales (112 núcleos) Intel Xeon de 64 bits y con 12 Gb de memoria RAM.
- 36 nodos *six-core* duales (432 núcleos) Intel Xeon de 64 bits y con 48 Gb de memoria RAM.



Conclusiones

- **Sistemas de pozo de potencial cuánticos se pueden fabricar con capas de compuestos semiconductores.**
- **Es posible calcular la susceptibilidad lineal y no lineal de sistemas confinados.**
- **Para un pozo de potencial infinito y anchura de 30 Å, se encuentra que su respuesta lineal presenta un pico de absorción correspondiente a transiciones alrededor 125 meV. Mientras que la parte imaginaria de la susceptibilidad no lineal, presenta picos correspondientes a las transiciones ω y 2ω alrededor de 62 y 125 meV.**

Gracias por su atención

Espectro EM

