

# GENERACIÓN DE SEGUNDO Y TERCER ARMÓNICO EN NANO-ESTRUCTURAS CON POTENCIAL DE CONFINAMIENTO ASIMÉTRICO: EL PAPEL DE LA APROXIMACIÓN DE ÁTOMO DE DOS NIVELES)

## SECOND-HARMONIC AND THIRD-HARMONIC GENERATION IN NANOSTRUCTURES WITH ASYMMETRIC CONFINEMENT POTENTIAL: THE ROLE OF TWO-LEVEL ATOM APPROXIMATION

D. CAUSIL<sup>a</sup>, M. URANGO-BAQUERO<sup>b</sup> Y A. PORTACIO<sup>c†</sup>

a) Facultad de Ciencias Básicas, Ingeniería y Arquitectura, Corporación Universitaria del Caribe, Sincelejo, 700001 Sucre, Colombia

b) Instituto de Ciencias Ambientales de la Orinoquia Colombiana-ICAOC, Universidad de los Llanos, 500001 Villavicencio

c) Facultad de Ciencias Básicas e Ingeniería, Universidad de los Llanos, 500001 Villavicencio, Colombia; aportacio@unillanos.edu.co<sup>†</sup>

† autor para la correspondencia

Recibido 24/7/2018; Aceptado 24/9/2018

Se estudia teóricamente la generación de segundo armónico (SHG) y la generación de tercer armónico (THG) en un punto cuántico cilíndrico (CQD) con potencial de confinamiento asimétrico, en el marco de la aproximación de sistema cuántico de dos niveles y el formalismo matriz densidad. Las energías y las funciones de onda para un electrón en el CQD se obtuvieron solucionando la ecuación de Schrödinger independiente del tiempo. Los cálculos numéricos se efectúan para un CQD de GaAs/GaAlAs. Se encontró el aumento del confinamiento de los portadores de carga producido por el aumento del campo magnético y/o las dimensiones de la nanoestructura generan un corrimiento al azul en las energías de transición de los electrones. También se encontraron resonancias múltiples asociadas con transiciones entre el estado excitado y el estado base y otras transiciones asociadas a cambios en los momentos dipolares permanentes.

The second harmonic generation (SHG) and third harmonic generation (THG) into a cylindrical quantum dot (CQD) with asymmetric confinement potential is studied theoretically within the framework the two-level atom approximation, by using the matrix density formalism. The energy levels and waves functions of an electron into CQD they were obtained by solving the time-independent Schrödinger equation. The numerical calculations make for a CQD of GaAs/GaAlAs. It was found that the increase in the confinement of the charge carriers produced by the increase of the magnetic field and/or the dimensions of the nanostructure generates a shift to blue in the transition energies of the electrons. Also a multiple resonances in the two-level atom approximation was found. These were associated with transition between excited state and ground state and a second transition getting a change permanent dipole moment.

PACS: Nonlinear optics (Óptica no lineal), 42.65.-k; Second harmonic generation (Generación de segundo armónico), 42.65.Ky

### I. INTRODUCCIÓN

Los avances en las tecnologías de crecimiento de materiales han permitido producir nano-estructuras con diferentes formas y tamaños [1–3]. Un efecto inherente de las nano-estructuras es el aumento de la intensidad en la repuesta óptica de estos nano-materiales producida por el aumento del confinamiento cuántico de los portadores de carga [4]. Esto ha motivado investigaciones teóricas y/o experimentales sobre la respuesta óptica en nano-estructuras que incluyen el estudio fenómenos ópticos tales como: absorción óptica [5], rectificación óptica (OR) [6], SHG [7] y THG [8]. Dentro de estos fenómenos ópticos no lineales la SHG y la THG son de gran interés principalmente por sus aplicaciones en la producción de imágenes diagnosticas no invasivas en muestras biológicas de alta resolución espacial y alto contraste a través de técnicas de microscopía [9–12].

Por otra parte, en el año de 1961 P. Franken *et. al.*, [13] realizaron la primera demostración experimental de SHG y concluyeron que la SHG es un proceso óptico no-lineal

de segundo orden donde un material no-centrosimétrico convierte parte de la luz incidente en luz con el doble de la frecuencia. La THG es un proceso análogo a la SHG con la diferencia que la THG ocurre sin importar la simetría del medio y hace referencia a la producción de una señal que triplica la frecuencia de la luz incidente [14].

Cabe anotar que entre las propiedades ópticas no lineales, las de segundo orden juegan un papel esencial por ser su magnitud generalmente mayor con respecto a los órdenes superiores cuando el sistema presenta cierta asimetría. Recientemente se han reportados trabajos donde producen asimetrías aplicando un campo eléctrico estacionario al sistema y/o confinando los portadores de carga, mediante potenciales asimétricos [15,16].

En el procedimiento teórico para el cálculo de la repuesta óptica en nanoestructuras generalmente se requieren tres niveles de energía para la SHG y al menos cuatro niveles de energía para la susceptibilidad de THG; sin embargo existen reportes [17–20], donde se han realizado cálculos teóricos de SHG y THG en la aproximación de sistema cuántico de

dos niveles en nanoestructuras con polaridad permanente. Es importante aclarar que aunque existen muchos estados propios de energía en un medio atómico, molecular o de estado sólido, para el cálculo de la susceptibilidad óptica, es conveniente utilizar la aproximación de sistema cuántico de dos niveles siempre que la frecuencia del campo óptico es cercana o igual a una de las frecuencias de transición entre dos niveles del sistema. El resto de los niveles cuánticos se convierten en un reservorio para los dos niveles resonantes con el campo óptico incidente y permiten la descripción fenomenológica de procesos disipativos. Para un sistema cuántico de dos niveles existen dos medidas de decoherencia,  $T_1$  y  $T_2$ . El tiempo  $T_1$  se denomina tiempo de decoherencia longitudinal o tiempo de emisión espontánea y mide la pérdida de energía del sistema. El tiempo  $T_2$  se denomina tiempo de coherencia transversal o tiempo de coherencia de fase, o el tiempo de dispersión elástica. Generalmente  $T_1 > T_2$  y sus valores se obtienen de resultados experimentales.

## II. TEORÍA

El sistema cuántico estudiado consiste de un electrón confinado en CQD de GaAs/AlGaAs en presencia de un campo magnético uniforme  $\mathbf{B}$  orientado en la dirección axial del CQD. En el marco de la aproximación de masa efectiva el Hamiltoniano  $\hat{H}_0$  del sistema está dado por:

$$\hat{H}_0 = \frac{1}{2m^*} \left( \hat{\mathbf{P}} - \frac{e}{c} \mathbf{A} \right)^2 + V_{conf}(\mathbf{r}), \quad (1)$$

donde  $m^*$  es la masa efectiva,  $\hat{\mathbf{P}}$  es el operador momento lineal,  $e$  es la carga fundamental,  $c$  es la velocidad de la luz

$$-\frac{\hbar^2}{2m^*} \left[ \frac{1}{\rho} \frac{\partial}{\partial \rho} \left( \rho \frac{\partial}{\partial \rho} \right) + \frac{1}{\rho^2} \frac{\partial^2}{\partial \phi^2} + \frac{\partial^2}{\partial z^2} \right] \psi - \frac{i\hbar\omega_c}{2} \frac{\partial \psi}{\partial \phi} + \frac{m^* \omega_c^2 \rho^2}{8} \psi + \frac{m^* \omega_\rho^2 \rho^2}{2} \psi + \frac{m^* \omega_z^2 z^2}{2} \psi + \alpha \frac{m^* \omega_z^2 z^3}{2L} \psi = E\psi \quad (5)$$

donde  $\omega_c = eB/(m^*c)$  es la frecuencia de ciclotrón. La solución de la Ec. 5 está descrita en Ecs. 6-8:

$$\psi_{m,n_\rho,n}(\rho, \phi, z) = \frac{1}{2\pi} \frac{1}{a^{1+|m|}} \left[ \frac{(|m| + n_\rho)!}{2^{|m|n_\rho}|m|!} \right]^{1/2} e^{im\phi} e^{-\frac{\rho^2}{4a^2}} \rho^{|m|} F(-n_\rho, |m| + 1, \frac{\rho^2}{2a^2}) g_n^{(0)}(z) + \frac{\alpha m^* \omega_z}{2L\hbar} \left[ \frac{\hbar}{2m^* \omega_z} \right]^{3/2} \times \\ \times \left( -\frac{\sqrt{(n+1)(n+2)(n+3)}}{3} g_{n+3}^{(0)}(z) + \frac{\sqrt{(n)(n-1)(n-2)}}{3} g_{n-3}^{(0)}(z) - 3(n+1)^{3/2} g_{n+1}^{(0)}(z) + 3(n)^{3/2} g_{n-1}^{(0)}(z) \right) \quad (6)$$

$$E(m, n_\rho, n) = \hbar \sqrt{\omega_c^2 + \omega_\rho^2} \left( n_\rho + \frac{|m| + 1}{2} \right) + \frac{m\hbar\omega_c}{2} + \hbar\omega_z \left( n + \frac{1}{2} \right) - \frac{(\alpha\hbar)}{4m^*L^2} \left[ \frac{15}{4} \left( n + \frac{1}{2} \right)^2 + \frac{7}{16} \right] \quad (7)$$

$$\text{donde, } a = \sqrt{\frac{\hbar/m^*}{\sqrt{\omega_c^2 + 4\omega_\rho^2}}} \text{ y}$$

$$g_n^{(0)}(z) = \left( \frac{m^* \omega_z}{\pi\hbar} \right)^{1/4} \frac{1}{\sqrt{2^n n!}} e^{-\frac{m^* \omega_z z^2}{\hbar}} H_n \left( \sqrt{\frac{m^* \omega_z}{2\hbar}} z \right), \quad (8)$$

donde,  $m$ ,  $n_\rho$ ,  $n$  son los números cuánticos, magnético, radial, azimutal respectivamente,  $F(a, b, x)$  es la función hipergeométrica confluyente,  $H_n(x)$  son los polinomios de Hermite. Los detalles para la solución de la Ec. 5 se

en el vacío,  $\mathbf{A}$  es el vector potencial del campo magnético uniforme, el cual se puede escribir como  $\mathbf{A}(\mathbf{r}) = 1/2\mathbf{B} \times \mathbf{r}$  con  $\mathbf{B} = B\mathbf{z}$  y en coordenadas cilíndricas se convierte en  $A_\rho = A_z = 0$ ,  $A_\phi = 1/2B\rho$ .  $V_{conf}(r)$ , es un potencial de confinamiento finito, el cual incluye potenciales parabólicos tanto en dirección radial como a lo largo de  $z$  y un término asimétrico en la coordenada  $z$ ; como se muestra a continuación:

$$V_{conf}(\mathbf{r}) = V_{conf}(\rho, \phi, z) = V_\rho(\rho) + V_z(z). \quad (2)$$

Las expresiones para  $V_\rho(\rho)$  y  $V_z(z)$  son:

$$V_\rho(\rho) = \begin{cases} \frac{m^* \omega_\rho^2 \rho^2}{2}, & \rho \leq R \\ V_0, & \rho > R \end{cases} \quad (3)$$

$$V_z(z) = \begin{cases} \frac{m^* \omega_z^2 z^2}{2} + \alpha \frac{m^* \omega_z^2 z^3}{2L}, & |z| \leq \frac{L}{2} \\ V_0, & |z| \geq \frac{L}{2} \end{cases} \quad (4)$$

donde  $\omega_\rho \sim \hbar/m^*R^2$  y  $\omega_z \sim \hbar/m^*L^2$ , con  $R$  y  $L$  el radio y la longitud del cilindro respectivamente,  $V_0$  es la altura de la barrera de potencial, que corresponde a la diferencia de las bandas de conducción del material (GaAs) y el material circundante ( $\text{Ga}_{1-x}\text{Al}_x\text{As}$ ), el valor de  $V_0$  depende de la concentración  $x$  de Al.  $\alpha$  es un parámetro adimensional que indica la intensidad de la perturbación asimétrica. La ecuación de Schrödinger en coordenadas cilíndricas tiene la forma:

encuentran en las referencias [21, 22]. En este artículo se consideran los primeros 2 estados cuánticos del electrón confinado en el CQD, los cuales están definidos por los números cuánticos  $(m, n_\rho, n)$ .

Después de obtener las energías  $E_k$  y las funciones de onda  $\Psi_k = \psi_{k=(m,n,p,m)}(\rho, \varphi, z)$  para cada estado  $k$  del electrón en el CQD, el sistema cuántico es excitado con un campo óptico  $E(t) = \tilde{E}e^{-i\omega t} + \tilde{E}^*e^{i\omega t}$ , donde  $\omega$  es la frecuencia de campo externo incidente,  $\tilde{E}$  la amplitud del campo óptico espacialmente homogéneo, en el marco de la aproximación de onda larga. La polarización eléctrica inducida  $P(t)$  en el CQD debido a la interacción con el campo óptico  $E(t)$  es:

$$P(t) = \varepsilon_0(\chi^{(1)}\tilde{E}e^{-i\omega t} + \chi^{(2)}|\tilde{E}|^2 + \chi_{2\omega}^{(2)}\tilde{E}^2e^{-i2\omega t} + \chi_{3\omega}^{(3)}\tilde{E}^3e^{-i3\omega t}) + cc., \quad (9)$$

donde,  $\chi^{(1)}$ ,  $\chi_0^{(2)}$ ,  $\chi_{2\omega}^{(2)}$ ,  $\chi_{3\omega}^{(3)}$  son la susceptibilidad óptica lineal, la rectificación óptica, generación de segundo armónico y generación de tercer armónico respectivamente y  $\varepsilon_0$  es la permitividad del vacío. Usando el método de matriz de la densidad y el procedimiento iterativo descrito en las Refs. [24,25], se obtienen expresiones para las susceptibilidades de segundo orden que se indica a continuación [17–20]:

$$\chi_0^{(2)}(\omega) = \frac{4\sigma_v M_{12}^2 \delta_{12} \left( E_{21}^2 \left[ 1 + \frac{T_1}{T_2} \right] + \left[ (\hbar\omega)^2 + \left( \frac{\hbar}{T_2} \right) \left[ \frac{T_1}{T_2} - 1 \right] \right] \right)}{\varepsilon_0 \left[ (E_{21} - \hbar\omega)^2 + \left( \frac{\hbar}{T_2} \right)^2 \right] \left[ (E_{21} + \hbar\omega)^2 + \left( \frac{\hbar}{T_2} \right)^2 \right]}, \quad (10)$$

$$\chi_{2\omega}^{(2)}(\omega) = \frac{\sigma_v \delta_{12} |M_{12}|^2}{\varepsilon_0 (E_{21} - \hbar\omega - i\hbar\Gamma_0)(E_{21} - 2\hbar\omega - i\hbar\Gamma_0)}, \quad (11)$$

$$\chi_{3\omega}^{(3)}(\omega) = \frac{\sigma_v \delta_{12}^2 |M_{12}|^2}{\varepsilon_0 (E_{21} - \hbar\omega - i\hbar\Gamma_0)(E_{21} - 2\hbar\omega - i\hbar\Gamma_0)(E_{21} - 3\hbar\omega - i\hbar\Gamma_0)}, \quad (12)$$

donde  $\sigma_v$  es la densidad de electrones en el CQD,  $E_{21} = E_2 - E_1$  es la energía de transición del estado  $\Psi_f$  al estado  $\Psi_i$ ,  $M_{ij} = \langle \Psi_j | e z | \Psi_i \rangle$  es el elemento de matriz del momento dipolar eléctrico de transición (se ha considerado la polarización del campo óptico en la dirección  $z$ ),  $\hbar\omega$  es la energía del fotón incidente,  $\delta_{if} = |M_{ff} - M_{ii}|$ ,  $\Gamma_0 = 1/T_2$ , con  $T_1$  y  $T_2$  los tiempos de relajación del sistema longitudinal y transversal respectivamente.

### III. RESULTADOS Y ANÁLISIS

En esta sección, se presentan los resultados para la SHG y la THG producidos en un CQD de AsGa/AsGaAl. Para realizar los cálculos se usaron los siguientes parámetros: masa efectiva del electrón  $m^* = 0.067m_0$  ( $m_0$  es la masa del electrón libre),  $T_1 = 1$  ps,  $T_2 = 0.2$  ps,  $n_r = 3.2$ ,  $\sigma_v = 5 \times 10^{24} \text{ m}^{-3}$  y 40% de concentración de Al para el cual la barrera de potencial es  $V_0 = 316$  meV [23,24].

La Figura 1(A), muestra la SHG  $\chi_{2\omega}^{(2)}$  como una función de la energía del fotón incidente para tres valores del campo magnético,  $B = 0$  T (curva azul),  $B = 10$  T (curva morada),  $B = 20$  T (curva roja) para un CQD con  $R = 5$  nm y  $L = 10$  nm. Se observa que los picos de resonancia para susceptibilidad de SHG se desplazan hacia el azul con el aumento del campo magnético, este comportamiento se debe a que la intensidad del campo magnético proporciona un término de confinamiento magnético parabólico adicional.

Bajo este confinamiento magnético adicional, el valor de la energía de transición en la sub-banda del CQD aumenta.

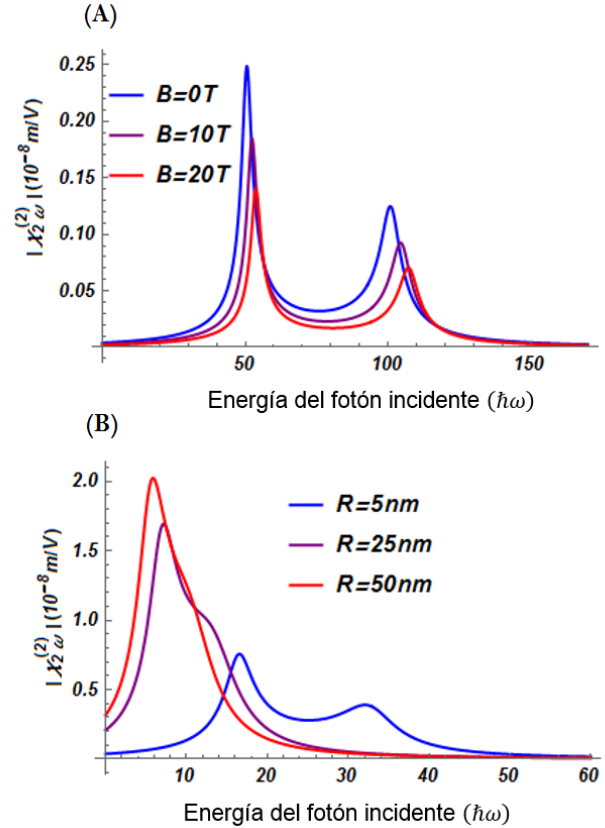


Figura 1. SHG como una función de la energía del fotón incidente para un CQD con  $R = 5$  nm y  $L = 10$  nm: (A) para tres valores del campo magnético,  $B = 0$  T (curva azul),  $B = 10$  T (curva morada),  $B = 20$  T (curva roja). (B) para tres valores del radio del CQD,  $R = 5$  nm (curva azul),  $R = 25$  nm (curva morada),  $R = 50$  nm (curva roja).

La Figura 1(B), muestra la SHG  $\chi_{2\omega}^{(2)}$  como una función de la energía del fotón incidente para tres valores del radio del CQD,  $R = 5$  nm (curva azul),  $R = 25$  nm (curva morada),  $R = 50$  nm (curva roja) para un CQD con  $L = 10$  nm. Se observa que el aumento del tamaño del CQD produce ancho del pico resonante sea más grande y por ello se observa un solo pico resonante, la razón física de este comportamiento es porque la disminución del confinamiento de los electrones producida por el aumento del tamaño del CQD, disminuye sus energías de transición y aumenta de las áreas extendidas en sus funciones de onda.

La Figura 2(A), muestra la THG  $\chi_{3\omega}^{(3)}$  como una función de la energía del fotón incidente para tres valores del campo magnético,  $B = 0$  T (curva azul),  $B = 10$  T (curva morada),  $B = 20$  T (curva roja) para un CQD con  $R = 5$  nm y  $L = 10$  nm y en la Figura 2(B), se muestra la THG  $\chi_{3\omega}^{(3)}$  como una función de la energía del fotón incidente para tres valores del radio del CQD,  $R = 5$  nm (curva azul),  $R = 25$  nm (curva morada),  $R = 50$  nm (curva roja) para un CQD con  $L = 10$  nm. Se observa en estas figuras que el aumento existe un corrimiento al azul en los picos resonantes cuando aumenta el confinamiento geométrico y/o el confinamiento magnético y las razones físicas son las mismas que para la Figura 1.

Por último se también se observa en las Figs. 1 y 2, resonancias múltiples aún en la aproximación de sistema cuántico de dos niveles, estas resonancias múltiples ya han sido analizados por criterios de microscopia óptica [25] de la siguiente forma: i) Los términos proporcionales a  $\delta_{12}$  en las Ecs. 11 y 12 están asociados con transiciones entre el estado excitado y el estado base y una segunda transición que implica el cambio en los momentos dipolares permanentes.

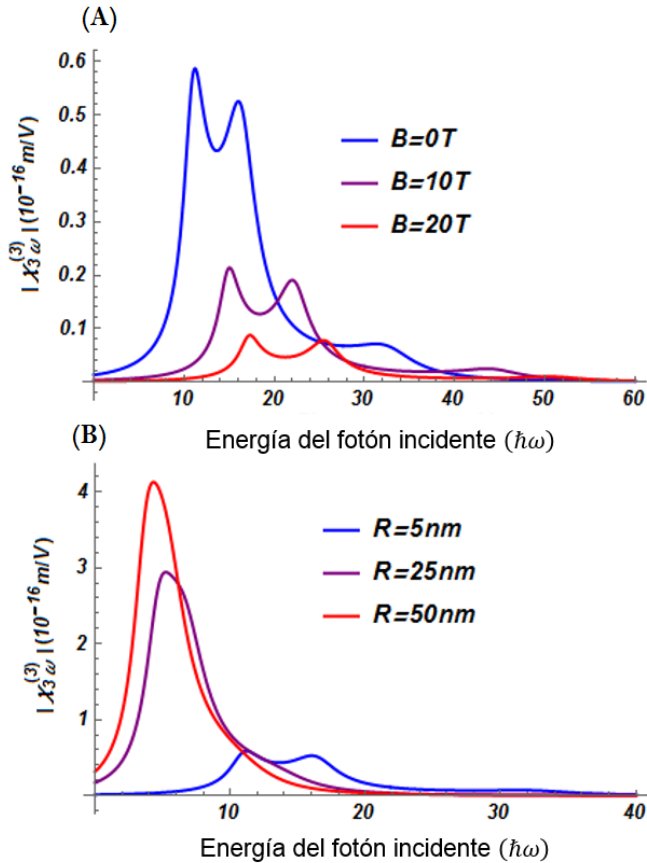


Figura 2. THG como una función de la energía del fotón incidente para un CQD con  $R = 5\text{ nm}$  y  $L = 10\text{ nm}$ : (A) para tres valores del campo magnético,  $B = 0\text{ T}$  (curva azul),  $B = 10\text{ T}$  (curva morada),  $B = 20\text{ T}$  (curva roja). (B) para tres valores del radio del CQD,  $R = 5\text{ nm}$  (curva azul),  $R = 25\text{ nm}$  (curva morada),  $R=50\text{ nm}$  (curva roja).

#### IV. CONCLUSIONES

En este artículo, se calcularon las energías y las correspondientes funciones de onda para el estado base y primer estado excitado de un electrón confinado en CQD de  $\text{GaAs}/\text{Ga}_{0.6}\text{Al}_{0.4}\text{As}$  en presencia de un campo magnético uniforme  $\mathbf{B}$  orientado en la dirección axial del CQD. Se encontró que aún en la aproximación de sistema cuántico de dos niveles existen resonancias múltiples, con lo cual un sistema que presente algún tipo de asimetría puede producir SHG y THG. También se encontró que el aumento del confinamiento geométrico y/o el confinamiento magnético produce un corrimiento al azul en los picos resonantes que presentan las señales de SHG y THG.

En resumen se encontró que el campo magnético y el tamaño de la nano-estructura juegan un papel importante

en las propiedades ópticas no lineales que presenta los semiconductores de baja dimensionalidad abriendo así nuevas oportunidades para la exploración práctica del efecto cuántico de tamaño y/o la acción de agentes externos en los dispositivos

#### AGRADECIMIENTOS

A. Portacio, reconoce el apoyo financiero de Universidad de los Llanos, bajo el proyecto "Cálculo de la respuesta óptica en nano-estructuras usando una ecuación maestra en la forma Lindblad" código C01-F02-010-2017.

D. Causil, agradece a la Corporación Educativa del Caribe "CECAR" por apoyar esta investigación básica en el campo de las ciencias físicas a través del patrocinio económico del proyecto de convocatoria interna AM5200101 - 281 - 2016.

#### REFERENCIAS

- [1] C. Tan, and H. Zhang, J. Am. Chem. Soc. 137, 12162 (2015).
- [2] Z. A Gacevic, D. Gomez Sanchez, and E. Calleja, Nano Lett. 15, 1117 (2015).
- [3] A. Surrente, R. Carron, P. Gallo, A. Rudra, B. Dwir and E. Kapon. Nano Research. 9, 3279, (2016).
- [4] M. Vahdani, Superlattices Microstruct. 76, 326 (2014).
- [5] M. Kouhi, Int. J. Mod. Phys. B. 31, 1750164 (2017).
- [6] H. Bahramiyan. Opt. Mater. 75, 187 (2018).
- [7] J. Wang, Y. Yu, Y. Wei, S. Liu, J. Li, Zhang-Kai Zhou, Z. Niu, S. Yu and X. Hua. Sci. Rep. 7, 2166 (2017).
- [8] R. Khordad, R, Opt. Commun. 391, 121 (2017).
- [9] B. Weigelin, *et. al*, J. Cell Sci. 129, 245 (2016).
- [10] C. Wu, T. Wang, C. Hsieh, S. Huang, J. Lin, S. Hsu, H. Wu, Y. Wu and T. Liu, Sci Rep. 6, 37210 (2016).
- [11] K. Tilbury and P.J. Campagnola, Perspect. Medicin Chem. 7, 21 (2015).
- [12] M. Han, G. Giese, and J.F. Bille, Opt. Express 13, 5791 (2005).
- [13] P. A. Franken, A. Hill, C. Peters, and G. Weinreich, Phys. Rev. Lett. 7, 118 (1961)
- [14] B.E Saleh, M.C. Teich, and B.R. Masters, J. Biomed. Opt. 13, 049901 (2008).
- [15] M. Olsen. Phys. Rev. A 88, 051802 (2013).
- [16] W. Xie, J. Lumin. 131, 943 (2011).
- [17] M.G. Kuzyk, K.D. Singer, and G.I. Stegeman, Adv Opt. Photonics. 5, 4 (2013).
- [18] L. Tsang, D. Ahn, and S. Chuang, Appl. Phys. Lett. 52, 697 (1988).
- [19] M. Zaluzny, Acta Phys. Pol. A. 90, 1118 (1996).
- [20] M. Zal, Phys. Rev. B 51, 9757 (1995).
- [21] A. A. Portacio, A.F. Jiménez, and M. Urango, Inf. Tecnol.. 27, 285 (2016)
- [22] A. A. Portacio, Jimenez, and M. Urango, Rev. Mex. Fis. 62, 330 (2016).
- [23] A. A. Portacio, B.A. Rodríguez, and P. Villamil, Physica B: Condensed Matter, 511, 68 (2017).

- [24] A. A. Portacio, A.A., B.A. Rodríguez, and P. Villamil, Superlattices Microstruct. 113, 550 (2018).  
[25] T. Aartsma and J. Matysik, Biophysical techniques in

photosynthesis. (Vol. 2. Springer Science & Business Media, 2008), pp. 35-54.

---

This work is licensed under the Creative Commons Attribution-NonCommercial 4.0 International (CC BY-NC 4.0, <http://creativecommons.org/licenses/by-nc/4.0>) license.

