



HAL
open science

Dynamique de phonons acoustiques dans des multicouches nanométriques

Norberto Daniel N. D. Lanzillotti Kimura

► **To cite this version:**

Norberto Daniel N. D. Lanzillotti Kimura. Dynamique de phonons acoustiques dans des multicouches nanométriques. Acoustique [physics.class-ph]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2009. Français. NNT : 2009PA066183 . tel-00814251

HAL Id: tel-00814251

<https://theses.hal.science/tel-00814251v1>

Submitted on 16 Apr 2013

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

THESE DE DOCTORAT DE
L'UNIVERSITE PIERRE ET MARIE CURIE

Spécialité

Sciences Mécaniques, Acoustique, Electronique et Robotique

Présentée par

M. Norberto Daniel LANZILLOTTI-KIMURA

Pour obtenir le grade de

DOCTEUR de L'UNIVERSITÉ PIERRE ET MARIE CURIE

Sujet de la thèse :

Dynamique de Phonons Acoustiques dans des Multicouches Nanométriques

soutenue à San Carlos de Bariloche, le 29 mai 2009

devant le jury composé de:

M. Carlos A. BALSEIRO	Instituto Balseiro, Centro Atómico Bariloche, U.N.Cu.	Examineur
M. Victor ETGENS	Institut des NanoSciences de Paris, U.P.M.C.	Examineur
M. Alejandro FAINSTEIN	Instituto Balseiro, Centro Atómico Bariloche, U.N.Cu.	Directeur de thèse
M. Jesse GROENEN	C.E.M.E.S. □ Université Paul Sabatier □ Toulouse III	Rapporteur
M. José V. LOLICH	Instituto Balseiro, Centro Atómico Bariloche, U.N.Cu.	Président
M. Horacio M. PASTAWSKI	Fa.M.A.F., Universidad Nacional de Córdoba	Rapporteur
M. Bernard PERRIN	Institut des NanoSciences de Paris, U.P.M.C.	Directeur de thèse

*a mi familia, que son parte de mí,
a mis amigos, a quienes no necesito decirles por qué,
y a los que me hicieron el aguante y terminaron siendo
piezas de este rompecabezas...*

L'essentiel est invisible pour les yeux.

A. Saint Exupéry

- *¿Cronopio, cronopio?*

- *Cronopio, cronopio*

J. Cortázar

'Cheshire Puss,' she began, rather timidly, [...] Would you tell me, please, which way I ought to go from here?'

'That depends a good deal on where you want to get to,' said the Cat.

'I don't much care where—' said Alice.

'Then it doesn't matter which way you go,' said the Cat.

'—so long as I get SOMEWHERE,' Alice added as an explanation.

'Oh, you're sure to do that,' said the Cat, 'if you only walk long enough.'

C. Lewis

- *Si lo he descubierto, es porque lo buscaba*

- *¿Cómo? ¿Acaso esperaba Ud. encontrarlo?*

- *Creí que no era improbable*

A. Conan Doyle

- *... ¿Por qué no has huido?*

- *Porque yo no puedo elegir por quién apostar.*

H. Murakami

Y dónde está el final, lo descubrirás cuando llegues a él.

Balada del viejo de Leningrado

Résumé

Dynamique de Phonons Acoustiques dans des Multicouches Nanométriques

Les phonons acoustiques jouent un rôle essentiel dans pratiquement toutes les propriétés électroniques et optoélectroniques des solides, et en particulier celles des semi-conducteurs. Pouvoir contrôler de façon cohérente ces phonons, ce qui constitue le principal objet de ce travail de thèse, permettra de les utiliser pour moduler la lumière et la charge aux nano- échelles spatiales et aux ultra-hautes fréquences et éventuellement pour traiter de l'information. L'ingénierie de nouveaux dispositifs pour manipuler et contrôler les vibrations acoustiques dans des solides sera cruciale pour le développement d'applications en nanophononique. La motivation de ce travail consiste à développer et étudier des dispositifs capables de contrôler la dynamique de phonons acoustiques dans les domaines subterahertz et terahertz, de démontrer de nouveaux phénomènes et d'envisager des applications.

Ce travail de thèse présente une étude expérimentale et théorique de la dynamique de phonons acoustiques dans les multicouches à l'échelle nanométrique à la fois par des techniques optiques pompe-sonde résolues en temps et par de la spectroscopie Raman spontanée. Pour concevoir et analyser les systèmes étudiés, nous avons développé des modèles qui ont permis de calculer les réponses optiques et acoustiques de structures excitées par des impulsions laser ultra-brèves, et d'évaluer la section efficace Raman dans les multicouches étudiées.

Nous avons d'abord étudié la dynamique de phonons acoustiques de ultra-haute fréquence (jusqu'au THz) dans des superréseaux et des nanocavités au moyen d'expériences de transmission acoustique, en démontrant les effets de confinement tant le domaine fréquentiel que dans le domaine temporel. Nous avons ensuite démontré les performances des superréseaux et des nanocavités comme générateurs et détecteurs de phonons acoustiques cohérents et monochromatiques. En introduisant un film métallique dans une nanocavité acoustique nous démontrons par ailleurs qu'il est possible d'exalter ou d'inhiber la génération ou l'émission de phonons vers le substrat, de manière analogue à l'effet Purcell étudié dans le contexte de l'électromagnétisme.

En variant les épaisseurs dans un empilement périodique, leurs caractéristiques de réflectivité changent. En se fondant sur ce même principe, nous avons conçu, optimisé et caractérisé des dispositifs phononiques aperiodiques. En utilisant la méthode d'optimisation muti-variable Nelder-Mead nous avons conçu des filtres et des miroirs basés sur des multicouches aperiodiques. Nous avons effectué une étude expérimentale par diffusion Raman de trois dispositifs hypersoniques, et nous avons comparé les résultats obtenus aux simulations

effectuées en utilisant un modèle photo-élastique. Il a été possible de reproduire les caractéristiques principales des spectres expérimentaux, en démontrant ainsi le potentiel de la diffusion Raman pour caractériser des échantillons complexes. De même, nous avons effectué des expériences de transmission d'hypersons, en utilisant des techniques d'acoustique picoseconde et nous avons validé expérimentalement le concept de filtres optimisés ; nous avons par ailleurs étudié l'influence des couches métalliques, utilisées dans ces expériences comme transducteurs acoustiques, sur la réponse du filtre.

Nous avons ensuite proposé l'utilisation de microcavités optiques dans des expériences de génération cohérente de phonons acoustiques afin d'amplifier les signaux en jouant à la fois sur les processus de génération et ceux de détection. En utilisant comme structure modèle une microcavité optique dont la couche séparatrice est formée par une nanocavité acoustique, nous démontrons les effets des résonances électroniques, optiques et acoustiques dans le domaine spectral, au moyen d'expériences de diffusion Raman, et dans le domaine temporel au moyen d'expériences d'acoustique picoseconde. Nous avons observé une amplification des signaux associée au comportement résonnant du champ électrique dans la cavité, et un changement des règles de sélection lié au caractère stationnaire de ce champ au sein de la cavité optique. Afin d'obtenir l'amplification optique maximale, et en étendant le concept de double résonance optique étudié dans le contexte de la diffusion Raman, nous avons proposé et démontré le concept de double amplification optique, qui consiste à choisir de manière appropriée les angles d'incidence des faisceaux pompe et sonde de manière que les deux processus, génération et détection, se trouvent en condition d'amplification maximale pour la longueur d'onde de travail.

Finalement nous avons fait une étude théorique et expérimentale des caractéristiques de couplage entre deux nanocavités acoustiques, et l'influence des différentes variables de conception. En augmentant le nombre de cavités couplées, nous avons identifié les paramètres significatifs de ces structures, en établissant les bases d'une ingénierie de systèmes complexes reposant sur des cavités acoustiques couplées. Un des résultats les plus significatifs est la démonstration expérimentale de l'existence d'oscillations Bloch et des états de Wannier-Stark de phonons acoustiques dans des structures formées par des nanocavités couplées.

Resumen / Résumé / Abstract

Dinámica de Fonones Acústicos en Multicapas Nanométricas

Este trabajo de tesis presenta un estudio experimental y teórico de la dinámica de fonones acústicos en multicapas a la escala nanométrica usando técnicas de acústica de picosegundos y dispersión Raman. Estudiamos las características de transmisión, generación y detección de fonones acústicos de ultra-alta frecuencia (en el rango GHz-THz) de superredes y nanocavidades de materiales semiconductores u óxidos dieléctricos. Diseñamos, optimizamos y caracterizamos dispositivos fonónicos aperiódicos y sistemas de nanocavidades acústicas acopladas. Finalmente utilizamos los efectos de confinamiento óptico para amplificar los procesos de generación y de detección de fonones acústicos coherentes y para modificar las reglas de selección. Por otra parte, desarrollamos modelos que nos permitieron calcular las respuestas ópticas y acústicas de estructuras excitadas por pulsos láser ultracortos, y evaluar la sección eficaz Raman en multicapas.

Dynamique de Phonons Acoustiques dans de Multicouches Nanométriques

Ce travail de thèse est une étude expérimentale et théorique de la dynamique de phonons acoustiques dans des multicouches à l'échelle nanométrique par acoustique picoseconde et diffusion Raman. Nous avons étudié les caractéristiques de transmission, génération et détection des phonons acoustiques de très hautes fréquences (jusqu'au THz) de superréseaux et nanocavités réalisées à l'aide de matériaux semiconducteurs ou d'oxydes diélectriques. Nous avons conçu, optimisé et caractérisé des dispositifs phononiques aperiódiques, et des nanocavités couplées. Enfin, nous avons utilisé les effets du confinement optique pour exalter les processus de génération et de détection de phonons coherents et pour modifier les règles de sélection. Par ailleurs, nous avons développé des modèles permettant de calculer les réponses optiques et acoustiques de structures excitées par des impulsions lasers ultrabrèves, et d'évaluer la section efficace Raman dans des multicouches.

Acoustic Phonon Dynamics in Nanometric Multilayers

This thesis presents an experimental and theoretical study of the acoustic phonon dynamics at the nanometric scale, by picosecond acoustic techniques and Raman scattering. We have studied the acoustic phonon (with frequencies in the GHz-THz range) transmission, generation and detection in superlattices and nanocavities made of semiconductor or dielectric oxide materials. We have designed, optimized and characterized aperiodic phonon devices and coupled acoustic nanocavity systems. Finally, we have used the optical confinement effects to enhance the coherent acoustic phonon generation and detection processes and to change the selection rules. In addition, we have developed models to compute the acoustic and optical responses of structures excited by ultrashort laser pulses, and to evaluate the Raman scattering cross section in nanometric multilayers.

Índice general

Résumé	I
Resumen / Résumé / Abstract	III
Índice general	VII
Motivación	1
1. Nanofonónica en sistemas unidimensionales	7
1.1. Nanofonónica: breve reseña histórica	8
1.2. Cristales fonónicos unidimensionales	10
1.2.1. El minigap acústico	13
1.2.2. Análisis de superredes infinitas	14
1.2.3. Modos distribuidos, modos evanescentes y modos confinados	18
1.3. Espejos distribuidos de fonones acústicos	19
1.4. Nanocavidades acústicas	22
1.4.1. Características generales	23
1.4.2. Influencia de la reflectividad de los espejos	24
1.4.3. Influencia del espaciador acústico	26
2. Luz e hipersonido: métodos experimentales y simulación numérica	31
2.1. Cálculo del desplazamiento atómico y de la reflectividad acústica	32
2.2. Fotoluminiscencia	35
2.3. Dispersión Raman	36
2.3.1. Método experimental	40
2.3.2. Simulación numérica del modelo fotoelástico	42
2.3.3. Dispersión Raman en superredes	45
2.4. Generación y detección de fonones acústicos coherentes	46
2.4.1. Modelo fotoelástico de generación y detección	48
2.4.2. Dispositivo experimental	54
2.4.3. Generación coherente de fonones acústicos en superredes	59
3. Superredes y nanocavidades acústicas	63
3.1. Dinámica de fonones acústicos en cavidades y espejos de hipersonido	64
3.1.1. Descripción de las muestras	65

3.1.2.	Experimentos de transmisión de hipersonido	67
3.1.3.	Tiempo de vida media en una cavidad de fonones	71
3.1.4.	Efecto Hartman en fonones acústicos	73
3.2.	Transductores basados en superredes y cavidades	76
3.2.1.	Generadores de fonones coherentes	77
3.2.2.	Detectores cuasimonocromáticos de fonones coherentes	81
3.3.	Generación coherente en nanocavidades híbridas metal-óxido	89
3.3.1.	Descripción de las muestras	90
3.3.2.	Modos resonantes en nanocavidades híbridas	92
3.3.3.	Experimentos de generación coherente en muestras híbridas	93
3.3.4.	Efecto Purcell en fonones acústicos	97
3.4.	Conclusiones	101
4.	Dispositivos aperiódicos para fonones acústicos	103
4.1.	Diseño y optimización de filtros y espejos para hipersonido	104
4.1.1.	Espejo de banda ancha	104
4.1.2.	Optimización de multicapas aperiódicas	105
4.1.3.	Filtro de borde	108
4.1.4.	Filtro notch	114
4.1.5.	Filtro de color	116
4.1.6.	Filtro de borde de banda ancha	117
4.2.	Caracterización y estudio experimental de dispositivos fonónicos	119
4.2.1.	Caracterización estructural y electrónica de las muestras	119
4.2.2.	Dispersión Raman y el problema inverso	122
4.2.3.	Caracterización Raman de dispositivos fonónicos	125
4.3.	Transmisión de fonones acústicos en filtros optimizados	129
4.3.1.	Diseño y caracterización de las muestras	129
4.3.2.	Experimentos de transmisión acústica en filtros optimizados	132
4.4.	Conclusiones	134
5.	Acústica de picosegundos en microcavidades ópticas	137
5.1.	Ingeniería de campos electromagnéticos	138
5.2.	Dispersión Raman resonante en microcavidades ópticas	142
5.2.1.	Descripción de la muestra	142
5.2.2.	Doble resonancia óptica	145
5.2.3.	Raman resonante con un estado excitónico	148
5.3.	Generación coherente de fonones acústicos en microcavidades ópticas	152
5.3.1.	Modelo de generación y detección en microcavidades ópticas	152
5.3.2.	Reglas de selección para la generación coherente de fonones acústicos en una cavidad óptica	161
5.3.3.	Generación coherente de fonones en condición de resonancia óptica	164
5.3.4.	Doble amplificación óptica	171
5.4.	Conclusiones	177

6. Superestructuras formadas por cavidades acústicas acopladas	179
6.1. Moléculas nanofonónicas	180
6.1.1. Acoplamiento de dos nanocavidades acústicas	180
6.1.2. Dispersión Raman en moléculas fonónicas	185
6.2. Formación de bandas y oscilaciones de Bloch en sistemas acústicos	189
6.2.1. Acoplamientos de múltiples nanocavidades acústicas	189
6.2.2. Oscilaciones de Bloch y niveles de Wannier-Stark fonónicos	194
6.2.3. Manipulación del campo eléctrico y dispersión Raman	198
6.2.4. Estudio experimental de las oscilaciones de Bloch de hipersonido	203
6.3. Conclusiones	207
7. Conclusiones	209
Bibliografía	215
A. Interferómetro de Sagnac	227
B. Ataque químico selectivo en heteroestructuras GaAs/AlGaAs/AlAs	233
Agradecimientos	235
Publicaciones asociadas a esta Tesis	237
Otras publicaciones realizadas durante el período de la Tesis	241

Motivación

Los fonones acústicos juegan un rol esencial en prácticamente todas las propiedades electrónicas y optoelectrónicas de los sólidos, y en particular de los semiconductores [1]. Por ejemplo, salvo a muy bajas temperaturas, los fonones acústicos y ópticos constituyen el límite principal para la conductividad eléctrica. Del mismo modo, constituyen el mecanismo principal para la relajación de la energía cinética de los portadores en las bandas de energía, por lo que gobiernan el desempeño de los dispositivos optoelectrónicos. Los fonones acústicos son igualmente los principales portadores de calor en aislantes y semiconductores. A través de su control coherente, lo cual constituye el tema central de esta tesis, los fonones acústicos podrían ser usados para procesar información, y para controlar luz y carga en la nanoescala y a ultra-altas frecuencias. La nanofonónica, al considerar longitudes de onda de nanómetros y frecuencias de terahertz agrega una nueva dimensión a la electrónica y a la fotónica, en el diseño de dispositivos para procesamiento de información, y para la nanoscopía no destructiva incluyendo medios opacos e *in-vivo*.

La ingeniería de nuevos dispositivos para manipular y controlar vibraciones acústicas en sólidos será crucial para el desarrollo de aplicaciones en nanofonónica. La motivación inicial de este trabajo es desarrollar y estudiar dispositivos capaces de controlar la dinámica de fonones acústicos en el rango GHz-THz que permitan evidenciar nuevos fenómenos y aplicaciones. La ingeniería de fonones acústicos incluye el control de la interacción del hipersonido con otros fonones, con fotones y con portadores de carga.

Los cristales fonónicos son estructuras artificiales con una modulación periódica de sus propiedades elásticas; esta periodicidad induce la aparición de bandas de energías permitidas y prohibidas. La interacción de estos cristales con una onda acústica es, consecuentemente, similar a la de un cristal fotónico con una onda electromagnética. Las superredes pueden ser consideradas como reflectores de Bragg de fonones acústicos [2]. Una cavidad acústica consiste en un espaciador encerrado por dos espejos fonónicos. Las cavidades acústicas permiten modificar la densidad de estados fonónicos y localizar la distribución espacial de desplazamientos atómicos dentro de una estructura, confinando y amplificando un modo energético en particular. Por ello puede considerárselas como el equivalente fonónico de los pozos cuánticos. Recientemente se ha demostrado el confinamiento de fonones acústicos de frecuencias del orden de 0.5 THz mediante experimentos de dispersión Raman [3–7]. Sin embargo, no existen antecedentes del estudio de nanocavidades acústicas en el dominio temporal, ni una caracterización directa de las propiedades de transmisión y reflexión de estos dispositivos. La transmisión de un electrón a través de una barrera de potencial es uno de los problemas más simples y a la vez uno de los más llamativos e interesantes de la

mecánica cuántica. En 1962, Hartman [8] establece que bajo determinadas condiciones, el tiempo de transmisión de un electrón a través de una barrera de potencial es independiente del ancho de la misma. Este fenómeno fue recientemente estudiado en el dominio de la óptica [9], y en acústica en el rango MHz [10]. El análisis del efecto Hartman fonónico, en el contexto del estudio de la transmisión a través de un espejo de fonones será uno de los objetivos de esta tesis.

Por otra parte, las multicapas de interferencia óptica formadas por un apilamiento alternado (no necesariamente periódico) de materiales dieléctricos con diferentes índices de refracción son componentes centrales en diversas aplicaciones, que incluyen la instrumentación científica, el almacenamiento de información y las telecomunicaciones, entre otras. Además de su uso como espejos de alta reflectividad, son la base de filtros ópticos con funciones de reflectividad y transmisión sofisticadas [11–13]. Teniendo en cuenta la similitud entre sistemas fotónicos y fonónicos, es posible prever que con ordenamientos no-periódicos sea posible realizar una “ingeniería” de las vibraciones acústicas, que lleve a dispositivos fonónicos altamente optimizados [7]. Los filtros y espejos de fonones tienen potencial aplicación en acústica de picosegundos, generación coherente de fonones, óptica de fonones, caracterización de nanoestructuras y en dispositivos optoelectrónicos, donde las estructuras periódicas simples no satisfacen los requerimientos acústicos. Estos dispositivos fonónicos están diseñados para controlar longitudes de onda de pocos nanómetros. Los requerimientos sobre las variaciones de los espesores, y calidad de las interfaces están en el límite de la construcción de las multicapas. El diseño, crecimiento y caracterización de filtros aperiódicos para el control de vibraciones acústicas en el rango GHz-THz es un tema abierto y activo en nanofonónica.

Trabajar con fonones en el rango GHz-THz implica el uso de técnicas capaces de generar y detectar vibraciones en escalas de tiempo de fs-ps. A partir de los años sesenta, el desarrollo de láseres pulsados ha permitido la generación de ondas acústicas de alta frecuencia (MHz). El ancho de los pulsos de luz es el limitante tanto de las máximas frecuencias que pueden generarse, como de la resolución temporal que se puede alcanzar. En la década del ochenta, el desarrollo de los láseres de titanio-zafiro, con pulsos de algunas centenas de fs permitió el acceso al dominio GHz. En 1984 se desarrolla la técnica de acústica de picosegundos, en la que ondas acústicas de algunas decenas de GHz son generadas y detectadas por un transductor metálico [14]. La utilización de una geometría de transmisión acústica [15], combinada con la técnica de generación coherente de fonones usando láseres ultra-rápidos, y el desarrollo de técnicas de detección interferométricas [16] ha permitido el estudio de la propagación de fonones acústicos a través de sustratos cristalinos. Uno de los objetivos principales de este trabajo es aplicar estas técnicas al estudio de las nanocavidades acústicas y dispositivos diseñados con respuestas específicas.

Las microcavidades ópticas semiconductoras basadas en reflectores de Bragg poseen estados fotónicos confinados, dando lugar a fenómenos físicos y dispositivos cualitativamente novedosos [17]. Las microcavidades ópticas han sido objeto de investigación muy activa durante los últimos diez años, y han sido utilizadas para estudiar, por ejemplo, la modificación de la vida media fotónica [18], oscilaciones paramétricas [17], la condensación de Bose-Einstein de polaritones de cavidad [19, 20], el láser de polaritones [21, 22], y la ampli-

ficación de señales Raman [23], entre otros. Las microcavidades ópticas también amplifican la interacción entre la luz y los fonones. En particular, se ha utilizado el confinamiento y amplificación del campo de fotones en estas cavidades de alto-Q para amplificar la generación óptica de fonones mediante procesos Raman, y para evidenciar efectos nuevos en la física de fonones en nanoestructuras semiconductoras [24, 25]. Estas resonancias ópticas pueden ser complementadas con resonancias electrónicas dando lugar a secciones eficaces de dispersión Raman enormemente aumentadas ($\sim 10^7$) [26]. El uso del confinamiento óptico en una microcavidad para la generación óptica coherente y amplificada ultra-rápida de fonones (a diferencia de la generación incoherente por dispersión Raman espontánea), para la potencial realización de una fuente monocromática de fonones acústicos de ultra-altas frecuencias [27] es un concepto que no ha sido explorado aún, a pesar del gran interés que este tema despierta.

Como se mencionó previamente, las microcavidades ópticas presentan una densidad de estados fotónica modificada respecto a la de los materiales masivos. La emisión de átomos o excitones puede modificarse cambiando la densidad de estados fotónicos, éste es el denominado efecto Purcell, originalmente propuesto en el dominio de las microondas [28]. Esta modificación puede lograrse ya sea cambiando la función dieléctrica en las proximidades del emisor [29, 30], o más fundamentalmente introduciendo el emisor en una microcavidad óptica [31]. Dependiendo de la superposición entre el espectro del emisor con los máximos y mínimos de la densidad de estados fotónica modificada, la emisión puede amplificarse [28, 32] o inhibirse [33]. Estas ideas han sido aplicadas para modificar otras interacciones entre radiación y materia, por ejemplo, la dispersión inelástica de luz [34, 35]. Estos mismos conceptos podrían ser extendidos para el control de la emisión de hipersonido coherente, para el potencial desarrollo de láseres de sonido eficientes.

La ecuación de ondas que describe la propagación de fotones en medios materiales es similar a la ecuación de Schrödinger, donde las energías son reemplazadas por la función dieléctrica dependiente de la posición, y las condiciones de contorno electromagnéticas reemplazan aquellas válidas para la función de onda [36]. La propagación de sonido está regida por una ecuación de ondas donde los parámetros relevantes son las densidades y las velocidades del sonido en los materiales utilizados, y las condiciones de contorno están dadas por la continuidad del desplazamiento atómico y de las tensiones en las interfaces entre dos materiales distintos. Estas semejanzas permiten prever la existencia de fenómenos en las áreas de la fotónica y la fonónica equivalentes a los que se observan en la física del estado sólido para electrones. Recientemente se han demostrado teórica y experimentalmente las oscilaciones de Bloch, y los niveles de Wannier-Stark en sistemas fotónicos basados en microcavidades acopladas [37–39]. Asimismo, basándose nuevamente en la analogía entre nanocavidades acústicas y microcavidades ópticas, se predijo teóricamente la existencia de efectos de acoplamiento, potenciales fonónicos, y la posibilidad de evidenciar oscilaciones de Bloch en sistemas formados por cavidades acústicas acopladas [40, 41].

Este trabajo de tesis se focaliza en dos líneas principales en lo referente a la investigación de la ingeniería de fonones acústicos en nanoestructuras: por un lado, en el estudio y demostración de los análogos fonónicos de fenómenos acústicos, ópticos y electrónicos, como por ejemplo el confinamiento en cavidades, la transmisión resonante, los procesos

de interferencia en sistemas no-periódicos, el efecto Hartman, y las oscilaciones de Bloch. Por el otro, en la generación y la detección de fonones acústicos coherentes y su uso en el control coherente de fotones.

La primera línea de investigación trata sobre el diseño y caracterización de dispositivos para hipersonido basados en heteroestructuras semiconductoras y de materiales multifuncionales, capaces de evidenciar nuevos fenómenos físicos en el dominio de la nanofonónica. La caracterización de estas muestras se realiza mediante técnicas ópticas, ya sea en el dominio espectral mediante experimentos de dispersión Raman, o en el dominio temporal usando técnicas de generación coherente de fonones acústicos con láseres ultra-rápidos. Las estructuras estudiadas están basadas en estructuras que contienen superredes periódicas (reflectores de Bragg, cavidades acústicas, moléculas fonónicas, y resonadores de Bloch), o bien en arreglos no-periódicos (filtros y espejos optimizados).

La segunda línea de investigación trata un problema específico de la nanofonónica: el acoplamiento entre la luz y los fonones acústicos. Se aborda el problema de la generación y detección de fonones coherentes usando pulsos ultra-cortos de luz, y se estudian diferentes sistemas capaces de actuar como transductores de hipersonido. Se analiza cómo es posible modificar las características intrínsecas de un dispositivo realizando una ingeniería de los estados electrónicos (efecto de resonancia con un estado electrónico confinado), fotónicos (resonancia óptica) y acústicos (efecto Purcell fonónico).

La tesis se encuentra organizada en siete capítulos. Las características fundamentales de superredes, espejos y nanocavidades acústicas se presentan en el Cap. 1. Se analizan los sistemas infinitos, y se derivan los conceptos asociados para estructuras finitas, determinando en cada caso la influencia de los diferentes parámetros de diseño involucrados.

En el Cap. 2 se describen tanto para los experimentos de dispersión Raman como para los de generación coherente de fonones acústicos utilizando láseres ultra-rápidos, las características principales de los dispositivos experimentales y de las técnicas y métodos de simulación empleados durante el desarrollo del presente trabajo.

El Cap. 3 se centra en el estudio de sistemas fonónicos simples, *i.e.* superredes y nanocavidades acústicas. En primer lugar se estudia la transmisión de hipersonido a través de estos dispositivos desacoplando los mecanismos de generación y detección de fonones acústicos y usando transductores metálicos espectralmente anchos. Luego se caracterizan las superredes y nanocavidades como generadores y detectores de ultra-alta frecuencia orientados a la monocromaticidad, en experimentos de transmisión, combinando estos dispositivos con un transductor de banda ancha. Finalmente, se estudia la posibilidad de modificar la emisión de los transductores metálicos para hacerlos discretos, y cambiar su espectro usando los conceptos del efecto Purcell, combinando un transductor metálico y un espejo de fonones basado en $\text{SrTiO}_3/\text{BaTiO}_3$ para formar una nanocavidad híbrida metal-óxido. Se presentan resultados experimentales y teóricos sobre la generación coherente de fonones acústicos en estas estructuras y se estudian los efectos de amplificación e inhibición de la emisión de fonones producida por el cambio en la densidad de estados acústicos inducida por la presencia del espejo de hipersonido.

El diseño, análisis y caracterización de nanoestructuras fonónicas basadas en multicapas aperiódicas se presenta en el Cap. 4. Se introducen las técnicas y estrategias de opti-

mización de dispositivos para hipersonido, y se analizan diversos casos de espejos y filtros optimizados para fonones acústicos en el rango GHz-THz. Se estudia experimentalmente la caracterización de estas estructuras complejas mediante experimentos de dispersión Raman y de transmisión de hipersonido coherente.

En el Cap. 5 se estudia la generación coherente de fonones acústicos en microcavidades ópticas. Se exponen los resultados experimentales de la dispersión Raman en condición de doble resonancia óptica y en resonancia con un estado electrónico confinado en una nanocavidad acústica. Teniendo en cuenta la similitud de ambos procesos, se extienden estos conceptos al dominio temporal, y se presentan los resultados del estudio de la generación coherente de fonones acústicos en microcavidades ópticas. Se realiza un análisis de la influencia del confinamiento de los fotones en los procesos de generación y detección de hipersonido coherente, tanto desde el punto de vista de las reglas de selección como de la amplificación de las señales. Se presentan los resultados del estudio experimental de dos microcavidades, y se determinan las condiciones óptimas de amplificación de señales en sistemas con confinamiento fotónico.

El Cap. 6 está dedicado al estudio de sistemas formados por nanocavidades acústicas acopladas, y la dinámica de fonones en los mismos. En primer lugar, se presentan las características principales de un sistema formado por dos cavidades: “la molécula fonónica”. Mediante experimentos de dispersión Raman en condición de doble resonancia óptica, se estudia el acoplamiento entre los dos resonadores de hipersonido. En segundo lugar, se presentan los conceptos fundamentales de la formación de bandas por el acoplamiento de nanocavidades, de los potenciales fonónicos lineales, y de las oscilaciones de Bloch y los estados de Wannier-Stark acústicos. Se estudia cómo, mediante la ingeniería del campo electromagnético dentro de la estructura, es posible evidenciar u ocultar la presencia de un modo Raman asociado a un estado de Wannier-Stark acústico. Asimismo se presentan resultados experimentales de la caracterización de un resonador de Bloch en el dominio temporal mediante experimentos de generación coherente de fonones acústicos con láseres ultra-rápidos.

Finalmente, en el Cap. 7 se presentan las conclusiones generales de la tesis, donde se resumen los principales resultados y se enumeran las perspectivas futuras e impacto del presente trabajo en el campo de la nanofonónica.

Capítulo 1

Nanofonónica en sistemas unidimensionales

La reflexión de fonones propagándose en forma normal a la interfaz entre dos medios elásticos de diferente impedancia acústica es análoga a la reflexión de ondas electromagnéticas en la interfaz entre dos medios con diferente índice de refracción. Extendiendo los conceptos de multicapas de interferencia óptica al área de las propiedades acústicas a escala nanométrica, es posible diseñar espejos, filtros y cavidades intercalando dos o más materiales con distintas propiedades elásticas. Las superredes de materiales semiconductores han despertado un gran interés durante las últimas décadas y recientemente se han comenzado a utilizar en aplicaciones de nanofonónica como espejos y transductores. El desarrollo de técnicas como el crecimiento epitaxial por haces moleculares (MBE¹) o técnicas epitaxiales químicas (MOCVD²) han hecho posible el crecimiento de estructuras en donde las capas tienen pocos nanómetros de espesor, con interfaces planas al nivel de la monocapa atómica; ambas condiciones esenciales para la concepción de dispositivos para aplicaciones en nanofonónica. En las siguientes secciones se introducirán los conceptos fundamentales de sistemas simples como son los espejos de Bragg (BR) para hipersonido, y las nanocavidades acústicas.

El presente capítulo se encuentra dividido en cuatro secciones. En la primera sección se presenta una reseña histórica de la ingeniería de fonones acústicos o nanofonónica. En la siguiente sección se introducen los conceptos fundamentales de nanofonónica, tratando particularmente los cristales fonónicos unidimensionales y el confinamiento de modos acústicos en defectos. En la tercera sección se discuten los conceptos involucrados en el diseño de espejos para ondas acústicas en el rango de los GHz-THz, que serán utilizados en los capítulos 3 y 4 como base para el diseño de estructuras más complejas. Finalmente, en la cuarta sección se resumen las propiedades generales de las cavidades de fonones acústicos, que serán de fundamental importancia en los sistemas estudiados en los capítulos 3, 5 y 6.

¹del inglés Molecular Beam Epitaxy

²del inglés Metal-Organic Chemical Vapour Deposition

1.1. Nanofonónica: breve reseña histórica

Un cristal es un arreglo periódico de átomos o moléculas. El patrón con el que estos átomos o moléculas se repiten en el espacio es la red cristalina. Un cristal presenta un potencial eléctrico periódico para un electrón que se propaga a través del mismo. Tanto la geometría como los componentes determinan sus propiedades de conducción eléctrica (y térmica). Los electrones se propagan como ondas en el potencial periódico, y bajo determinadas condiciones pueden propagarse sin dispersarse a través de la estructura. Asimismo, existen bandas de energía en las cuales los electrones no pueden propagarse en determinadas direcciones del cristal, son las llamadas brechas electrónicas o *gaps* electrónicos [42].

El análogo óptico es un cristal fotónico, en el cual los átomos o moléculas son reemplazados por medios materiales macroscópicos con diferentes constantes dieléctricas, y el potencial periódico es reemplazado por una función dieléctrica periódica (o de manera equivalente, por un índice de refracción periódico) [43]. Los cristales fotónicos son arreglos regulares de materiales con diferentes índices de refracción. El período espacial se denomina constante de red, dado que se corresponde con la constante de red de un cristal ordinario compuesto por un arreglo regular de átomos. Muchos de los conceptos básicos son comunes a los cristales y fueron utilizados para construir la teoría fundamental de los cristales fotónicos. Sin embargo, existe una diferencia importante entre las estructuras electrónicas y ópticas: la escala del parámetro de red. En el caso de los cristales ordinarios, la constante de red es del orden del angstrom, mientras que en el caso de los cristales fotónicos debe ser del orden de la longitud de onda que se está considerando. Por ejemplo, para longitudes de onda en el rango visible, el parámetro de red será del orden de los 100 nm, mientras que para microondas, alcanzará el cm [44].

Los cristales fotónicos se pueden clasificar en tres categorías dependiendo de la dimensionalidad del arreglo: unidimensionales, bidimensionales y tridimensionales [43, 44]. Los cristales fotónicos que trabajan en las regiones de microondas e infrarrojo lejano son relativamente fáciles de fabricar. Aquellos que trabajan en la región visible, y particularmente los cristales tridimensionales son difíciles de fabricar debido al tamaño de la constante de red involucrada. Sin embargo, varias tecnologías han sido desarrolladas en los últimos años que permiten obtener estructuras con períodos del orden de la centena de nanómetros.

Si el contraste entre los índices de refracción de los materiales que forman un cristal fotónico es suficientemente grande, y la absorción óptica despreciable, entonces la refracción y reflexión de la luz en todas las interfaces puede imitar varios de los fenómenos que el potencial atómico induce en los electrones. Diseñando apropiadamente un cristal fotónico, aparecen rangos de energía donde no existen modos propios electromagnéticos para determinadas direcciones. Estos rangos de frecuencias se denominan brechas fotónicas o *gaps* fotónicos [43, 44].

Los cristales fotónicos unidimensionales tradicionalmente se denominan multicapas dieléctricas, y sus propiedades ópticas han sido extensamente estudiadas. La relación de dispersión de un cristal fotónico puede ser representada por el replegamiento de la línea de dispersión de un material uniforme en la primera zona de Brillouin (de manera análoga al caso electrónico).

Las multicapas dieléctricas han sido utilizadas como espejos de alta reflectividad, y en recubrimientos *antireflex*. Los espejos distribuidos de Bragg o DBRs (del inglés Distributed Bragg Reflectors) conforman el pilar fundamental de las microcavidades ópticas planas [17]. La investigación de este tipo de estructuras resultó fuertemente impulsada por la propuesta de Yablonovitch [31] donde establece que mediante la ingeniería de los modos ópticos, la emisión de luz puede ser controlada en dispositivos de estado sólido. Desde fines de la década de los '90, se han realizado importantes avances en el diseño y construcción de materiales que presenten gaps fotónicos en el rango visible, y en el estudio de conceptos tanto básicos como aplicados que involucren microcavidades unidimensionales y nanoestructuradas. Las microcavidades ópticas tienen en la actualidad un inmenso número de aplicaciones, que van desde su utilización en láseres basados en LEDs [45, 46], hasta su utilización en el estudio de la condensación de Bose-Einstein de polaritones [19, 20].

La dinámica de las ondas acústicas responde a las ecuaciones de elasticidad, que se asemejan a las ecuaciones de Maxwell del electromagnetismo. En ambos casos, se trata de ecuaciones de onda. Simplemente reemplazando las constantes ópticas por las constantes elásticas apropiadas es posible hacer un paralelo entre las estructuras fotónicas y las estructuras fonónicas que presenten comportamientos ondulatorios semejantes. El análogo acústico de un cristal fotónico es el cristal fonónico, en el que los índices de refracción son reemplazados por las impedancias acústicas (producto de la velocidad del sonido por la densidad másica), y la función dieléctrica periódica es reemplazada por una función elástica periódica (o una impedancia acústica periódica). Un cristal fonónico es entonces un medio elástico, periódico, cuya absorción es despreciable. Como en el caso electrónico, existen bandas de energías prohibidas, o gaps acústicos en donde el sonido no pueden propagarse dentro del cristal. Al igual que en los casos electrónico y óptico, es posible realizar una ingeniería de estos gaps, impidiendo que ondas acústicas de determinadas energías puedan propagarse en determinadas direcciones.

El interés en los cristales fonónicos está basado tanto en la física fundamental involucrada en la propagación de ondas acústicas en medios elásticos periódicos como en sus potenciales aplicaciones. Durante los últimos 15 años, los cristales fonónicos han atraído la atención de numerosos grupos de investigación tanto teóricos como experimentales. Sin embargo, existen estudios anteriores como el trabajo de Narayanamurti *et al.* [15] en 1979, donde se investiga la propagación de fonones de alta frecuencia a través de una superred de GaAs/AlGaAs, que puede ser considerada como un cristal fonónico unidimensional. En este trabajo los autores observaron una transmisión selectiva por la superred cuando la longitud de onda de los fonones satisfacía la condición de Bragg. En 1987, Achenback *et al.* [47] publicaron un trabajo teórico en el que calculan la curva de dispersión de una estructura tridimensional infinita. En este artículo predicen la existencia de una banda de energías prohibidas (stop-band) para ondas acústicas longitudinales incidiendo normalmente en la estructura. En este mismo año, Yablonovitch predice la existencia de estructuras fotónicas tridimensionales que poseen bandas energéticas en donde no existen modos ópticos permitidos [31]. A partir de este momento, el auge de los cristales fotónicos impulsó el estudio de sus equivalentes acústicos, sirviendo muchas veces de inspiración para el desarrollo de nuevas estructuras y potenciales aplicaciones.

El estudio de estructuras que permitieran el blindaje acústico en el rango audible atrajo la atención de numerosos grupos [48–50]. La atenuación sonora en una estructura periódica fue demostrada por Martínez-Sala con los experimentos realizados en la escultura de Eusebio Sempere en España, que consistía en cilindros metálicos huecos de 29 mm de diámetro ordenados en un arreglo rectangular con un período de 100 mm. Se observó una significativa atenuación en el rango de frecuencias alrededor de 1.67 kHz [48].

El cristal fonónico más simple consiste en un ordenamiento periódico de dos materiales con impedancias acústicas diferentes formando una multicapa o superred unidimensional. El período de la estructura fonónica debe ser del orden de la longitud de onda del sonido que se quiere manipular. En el caso de sonido de frecuencias audibles, estas estructuras tendrán tamaños característicos del orden del metro. La longitud de onda disminuye al aumentar la energía de las ondas, y en el límite microscópico, las ondas de sonido serán descritas por fonones acústicos, y las longitudes de onda involucradas serán del orden de los pocos nanómetros. Es en esta escala en donde las técnicas de crecimiento se han encontrado limitadas para la construcción de estructuras fonónicas. Durante la última década se han realizando grandes avances en el desarrollo de técnicas de crecimiento que permiten obtener nanoestructuras uni-, bi- y tridimensionales de forma sistemática y controlada en la nanoescala, como por ejemplo el crecimiento epitaxial por haces moleculares, la litografía electrónica, y el autoensamblado de partículas coloidales, entre otras. En particular el desarrollo de técnicas de crecimiento epitaxial han permitido obtener estructuras con períodos de pocos nanómetros, y con interfaces definidas a nivel de la monocapa atómica. Esto ha posibilitado el estudio de estructuras para el control y manipulación de ondas acústicas con energías en el rango GHz-THz, dando origen a una nueva rama de estudios en nanociencia y nanotecnología: la nanofonónica o ingeniería de fonones acústicos [15, 51, 52]. El desarrollo de técnicas de caracterización de nanoestructuras, de fuentes de fonones coherentes y monocromáticos, y de dispositivos que permitan controlar la propagación de ondas acústicas en la nanoescala son algunos de los problemas abiertos en nanofonónica. La ingeniería de fonones acústicos utilizando multicapas será el objeto principal de estudio del presente trabajo.

1.2. Cristales fonónicos unidimensionales

Un cristal fonónico unidimensional se caracteriza por presentar una modulación periódica de las propiedades elásticas en una dimensión, y propiedades continuas en las otras dos dimensiones. En el caso de fonones acústicos longitudinales, con frecuencias en el rango GHz-THz (hipersonido), las longitudes de onda involucradas, y por lo tanto las constantes de red de los cristales fonónicos serán del orden de 1-50 nm. A diferencia del sonido audible, el hipersonido requiere un medio sólido para propagarse. La presencia de defectos o irregularidades atómicas en el medio sería el origen de centros de dispersión o localización debido a que su tamaño característico es del orden de la longitud de onda que se está considerando [53]. El requerimiento de interfaces planas y definidas a nivel atómico encuentra su justificación en este mismo argumento, y es el limitante para el desarrollo de dispositivos que involucren longitudes de onda que comprendan pocas celdas unidad de los

materiales utilizados. Para el desarrollo de dispositivos nanofonónicos, las estructuras son usualmente crecidas mediante métodos epitaxiales. Los semiconductores GaAs y AlAs y sus aleaciones se han convertido en el sistema modelo para el crecimiento de multicapas nanométricas, dado en parte, por el acuerdo que existe entre sus parámetros de red, y el extenso conocimiento acumulado de sus propiedades en estado masivo.

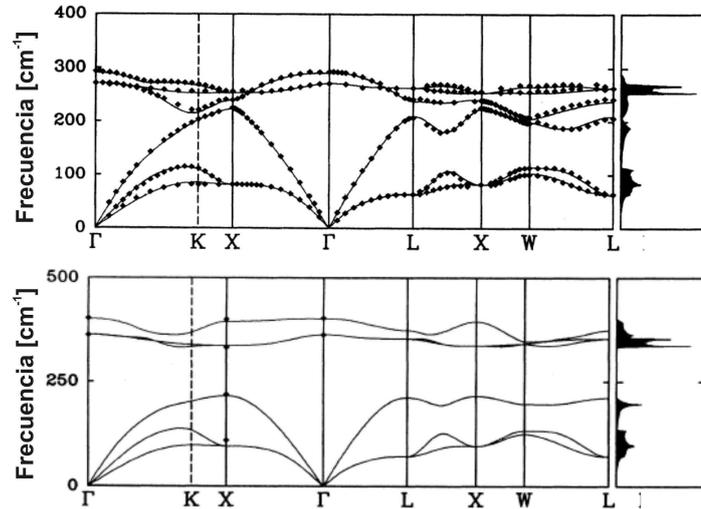


Figura 1.1: Relaciones de dispersión calculadas por Giannozzi et al. [54] para GaAs (arriba) y AlAs (abajo) *-bulk-* utilizando métodos *ab-initio*. Notar la superposición existente entre las ramas acústicas, y la separación energética entre las bandas ópticas. A la derecha de las relaciones de dispersión se puede observar la densidad de estados de cada uno de los materiales.

En la Fig. 1.1 se presenta la relación de dispersión de fonones para GaAs (arriba) y AlAs (abajo) masivos (*bulk*). A la derecha de las relaciones de dispersión se puede observar la densidad de estados de cada uno de los materiales. Debido a que hay dos átomos por celda unidad existen seis ramas de fonones, agrupadas en 3 bandas acústicas y tres ópticas. De las tres ramas, dos corresponden a modos transversales y una a un modo longitudinal. No existen regiones de solapamiento entre las ramas de los fonones ópticos: en el GaAs se extienden desde 270 cm^{-1} a 300 cm^{-1} mientras que en AlAs se ubican entre 365 cm^{-1} y 407 cm^{-1} . Debe notarse, sin embargo, que las ramas acústicas están prácticamente superpuestas. Esta superposición permite que en multicapas formadas por GaAs/AlAs, existan modos vibracionales extendidos a lo largo de toda la estructura [1].

A continuación se analizarán dos casos con el fin de comprender las características principales de los cristales fonónicos unidimensionales. En primer lugar se considera una multicapa formada por el apilamiento sucesivo de dos materiales cuyas impedancias acústicas $Z = \rho v$ coinciden. En términos acústicos, esta estructura es semejante a un material masivo con una impedancia acústica efectiva, al cual se le puede asignar una periodicidad arbitraria. Con el fin de simplificar aún más la exposición del problema, se considera que ambos materiales poseen constantes elásticas con idénticos valores. En la Fig. 1.2a se muestra un esquema de este tipo de estructura, donde se ha indicado un período arbitrario a . La relación de dispersión de este sistema es igual a la relación de dispersión de cualquiera

de los dos materiales que conforman la estructura (en este caso, un único material), con un replegamiento inducido por la presencia de la nueva periodicidad. De esta manera, para toda energía se puede encontrar un vector de onda k asociado a un modo de vibración de la red cristalina, al igual que en el caso del material masivo. Dado que no existe un contraste entre las impedancias acústicas de los dos materiales y que el período de la estructura puede definirse arbitrariamente, en los bordes y centro de la zona de la primera minizona de Brillouin no se abren gaps acústicos. En la Fig. 1.3a se muestra la relación de dispersión replegada de un medio continuo de AlGaAs.

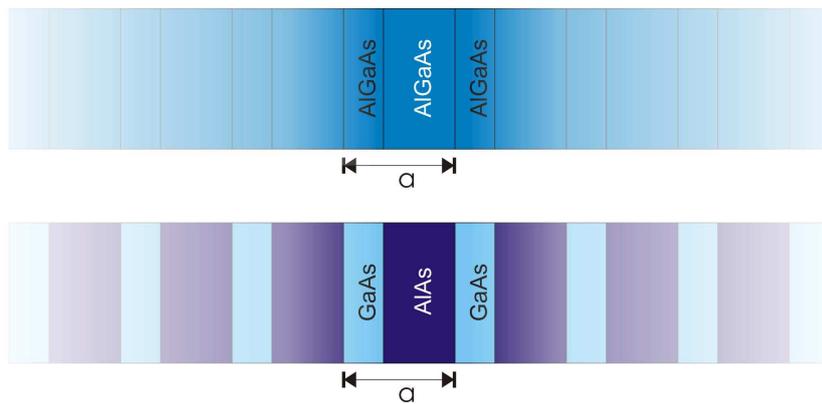


Figura 1.2: Esquema de dos estructuras periódicas. Panel superior: estructura periódica de AlGaAs, con una celda unidad arbitraria de dimensión a . Panel inferior, superred de GaAs/AlAs, con una periodicidad a , determinada por una bicapa.

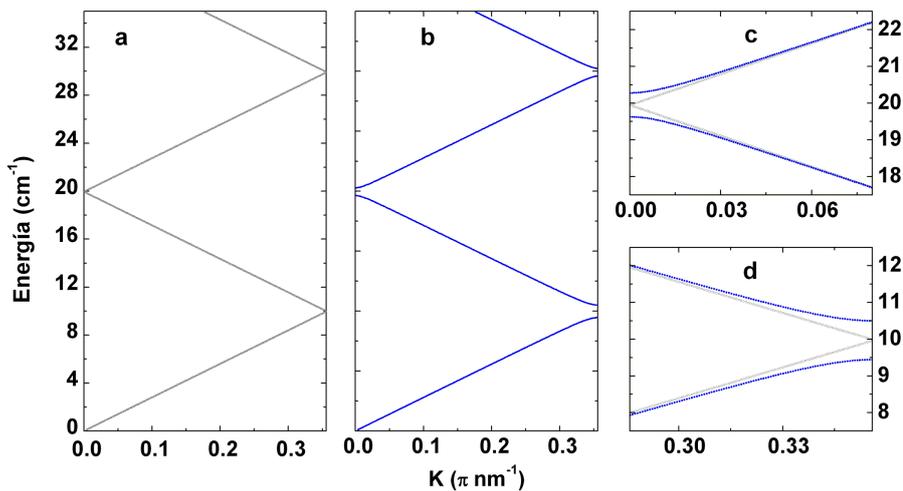


Figura 1.3: Relaciones de dispersión de una estructura homogénea de AlGaAs (panel a) y una superred formada por AlAs y GaAs (panel b). Paneles c y d: detalles de las relaciones de dispersión en las bandas energéticas alrededor del primer replegamiento en el centro y en el borde de zona respectivamente

El segundo caso consiste en una estructura formada por un apilamiento periódico de dos materiales: GaAs y AlAs, cuyo período es a , como en el primer caso (ver

esquema en la Fig. 1.2b). El contraste de impedancias acústicas entre estos materiales es $Z_{GaAs}/Z_{AlAs}=0.85$. Como puede observarse en la Fig. 1.3b, la relación de dispersión en este nuevo sistema es similar a la de los materiales masivos, con una velocidad efectiva que surge de un promedio pesado en ambos materiales. La extensión de la primera minizona de Brillouin queda determinada por el período de la estructura. Tanto en los bordes como en el centro de zona aparecerán bandas de energía que no tienen asociado ningún modo permitido independientemente del valor de k que se considere. El ancho de estas bandas queda determinado por el contraste entre las impedancias acústicas de los dos materiales, como también por la relación de espesores elegida. Se denominan a estas bandas de energía *minigaps* fonónicos o acústicos. Estos minigaps acústicos representarán uno de los pilares fundamentales del presente trabajo. Las estructuras periódicas pueden ser pensadas como reflectores perfectos de fonones (dado que las ondas con energías comprendidas en el minigap no pueden propagarse dentro del cristal), o como filtros selectivos (ya que *sólo* las ondas con energías dentro del minigap no pueden existir en la estructura). En el panel c (d) de la Fig 1.3 se muestra un detalle de las relaciones de dispersión replegadas correspondientes a estas dos estructuras infinitas alrededor del primer replegamiento en el centro (borde) de la minizona de Brillouin. Una vez más puede notarse cómo la relación de dispersión del material homogéneo (gris) no presenta minigaps, mientras que en el caso de la estructura periódica (azul) se observan bandas de aproximadamente 1 cm^{-1} que no poseen vectores de onda k asociados.

1.2.1. El minigap acústico

Se ha mostrado que la presencia de una modulación adicional dada por la superred provoca el replegamiento de la relación de dispersión, y la apertura de minigaps acústicos. En estos intervalos de frecuencias no existen vectores de onda reales capaces de transportar energía dentro de la estructura. A continuación se presentará un análisis cualitativo del origen de estos minigaps acústicos.

Una forma simple de entender cómo se forman los minigaps es analizar la distribución del desplazamiento atómico para los modos inmediatamente arriba y abajo del minigap entre la primera y la segunda banda en el borde de la minizona de Brillouin, a $k = \pi/a$. Para $k = \pi/a$, los modos son estacionarios y tienen una longitud de onda $\lambda = 2a$, es decir dos veces el período de la superred. Hay dos maneras de centrar un modo de este tipo. Se pueden posicionar los nodos en cada capa de baja impedancia acústica (*GaAs*), o en cada capa de alta impedancia acústica (*AlAs*). Cualquier otra posición violaría la simetría de la celda unidad respecto de su centro, dado que son modos estacionarios.

Teniendo en cuenta que estas son las dos únicas configuraciones con $k = \pi/a$, se analiza la distribución de energía elástica ($\rho(z)v^2(z)$) dentro de la estructura. El modo inmediatamente abajo del gap tiene la mayor parte de su energía concentrada en las capas de GaAs (material de menor impedancia acústica), dando una menor frecuencia que la siguiente banda, en donde la mayor parte de la energía se localiza en las capas AlAs (material de alta impedancia acústica respecto al GaAs), como se muestra en la Fig. 1.4. Alrededor del minigap acústico es posible entonces identificar la primera y segunda banda por los

materiales en los cuales se localiza la mayor parte de la energía. Un razonamiento similar puede aplicarse a estructuras que presenten un alto contraste de impedancias acústicas. En este caso se observa que para ambas bandas la energía se localiza principalmente en el material de alta impedancia acústica, pero con distribuciones espaciales diferentes. El gap en estos casos surge de las diferentes formas en que es posible localizar el desplazamiento acústico a lo largo de un período.

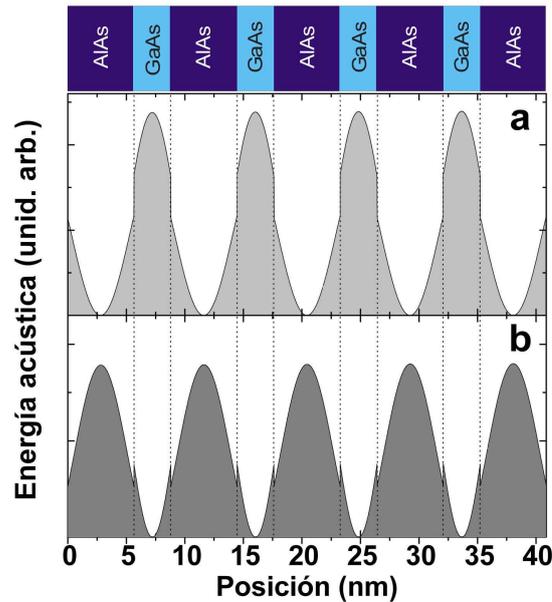


Figura 1.4: Distribución de la energía acústica en una superred formada por GaAs y AlAs, para los modos correspondientes a los primeros fonones replegados de borde de zona, de baja (panel a) y alta energía (panel b). Las líneas punteadas y el esquema de la estructura en la parte superior se incluyen para facilitar la localización de los materiales.

Cabe señalar que en una dimensión siempre se abren minigaps, tanto en el borde como en el centro de la minizona de Brillouin, cualquiera sea el contraste de impedancias acústicas. Cuanto más grande es este contraste, mayor será la diferencia de frecuencia entre los modos localizados en uno u otro material. Sin embargo, como se mostrará más adelante, bajo relaciones particulares de espesores y velocidades del sonido de ambos materiales, es posible que minigaps particulares permanezcan cerrados.

1.2.2. Análisis de superredes infinitas

Se considerará una superred infinita de GaAs/AlAs. La periodicidad introducida por la superred, donde el período está formado por una capa de GaAs y una de AlAs, determina una nueva primera zona de Brillouin, y produce un replegamiento de la relación de dispersión de los materiales masivos o *bulk*.

En la Fig. 1.5 se muestra la relación de dispersión para los modos longitudinales de GaAs *bulk* (línea continua) y AlAs *bulk* (línea de trazos), junto con la relación de dispersión de una superred cuyo período está formado por 5 monocapas de GaAs y 4 de AlAs.

Estas relaciones de dispersión fueron calculadas utilizando un modelo de cadena lineal por Colvard *et al.* [55]. Una vez más es importante notar que: 1) las ramas ópticas del GaAs y del AlAs se encuentran en regiones energéticas diferentes dando lugar a modos confinados en uno u otro material, 2) las ramas acústicas de los materiales *bulk* se extienden prácticamente sobre la misma región energética dando lugar a modos extendidos, 3) el replegamiento de las ramas acústicas da lugar a una única relación de dispersión que se extiende en una zona de Brillouin más chica que la de los materiales *bulk* y que se denominará primera minizona de Brillouin, y 4) en el centro y en el borde de la primera minizona de Brillouin se abren *gaps* de energía [2]. Estas regiones energéticas no tienen asociados vectores de onda reales. A continuación se estudiará cómo surgen estos *gaps* utilizando un modelo continuo.

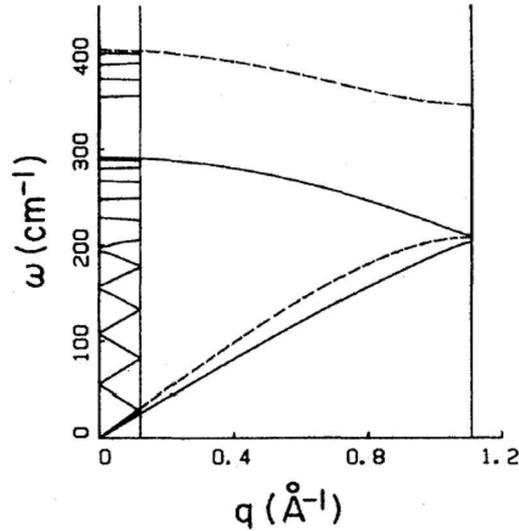


Figura 1.5: Relación de dispersión para los modos longitudinales calculadas por Colvard *et al.* [55] utilizando un modelo de cadena lineal. Primera zona de Brillouin: GaAs *bulk* (línea continua), AlAs *bulk* (línea de trazos). Zona reducida: superred GaAs₅/AlAs₄.

La ecuación que describe la propagación de ondas acústicas longitudinales en una estructura como la representada en la Fig. 1.6 está dada por [2]:

$$\frac{\partial}{\partial t} \left[\rho(z) \frac{\partial u(z, t)}{\partial t} \right] = \frac{\partial}{\partial z} \left[C(z) \frac{\partial u(z, t)}{\partial z} \right], \quad (1.1)$$

donde $\rho(z)$, $C(z)$ y $u(z, t)$ son la densidad, constante de fuerza y desplazamiento atómico respectivamente. En cada capa, la ec. 1.1 se reduce a la ecuación de ondas de un medio homogéneo,

$$\rho_j \frac{\partial^2 u(z, t)}{\partial t^2} = C_j \frac{\partial^2 u(z, t)}{\partial z^2} \quad (1.2)$$

donde j es el índice que identifica la capa. Suponiendo una dependencia armónica en el

tiempo, las soluciones de la ec. 1.2 son

$$u(z, t) = \phi(z)e^{i\omega t} \quad (1.3)$$

con

$$\phi_j(z) = a_j e^{ik_j z} + b_j e^{-ik_j z}. \quad (1.4)$$

Para el análisis que sigue a continuación se tendrá en cuenta la nomenclatura propuesta en la Fig. 1.6: se considera una superred infinita, cuya celda unidad esta formada por una capa de GaAs de espesor a , y una capa de AlAs de espesor b . El espesor total de un período será entonces $d = a + b$. Las capas con índice par (impar) son de GaAs (AlAs).

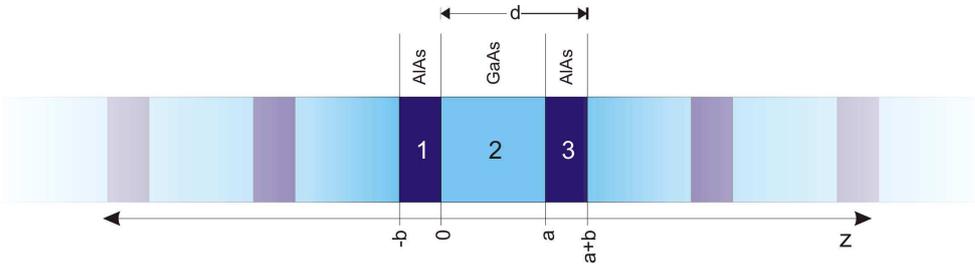


Figura 1.6: Esquema de un arreglo periódico de GaAs/AlAs. Nomenclatura para la numeración de las capas que forman el sistema. En este arreglo, cada celda unidad está formada por una capa de GaAs de espesor a y una de AlAs de espesor b . En ancho total del período es d .

Tomando en cuenta sólo la parte espacial, la solución para la primera capa queda expresada por:

$$\phi_1(z) = A_1 e^{ik_1 z} + B_1 e^{-ik_1 z}. \quad (1.5)$$

En la segunda región:

$$\phi_2(z) = A_2 e^{ik_2 z} + B_2 e^{-ik_2 z}. \quad (1.6)$$

La solución en la tercera región se puede obtener a partir de la solución en la primera región aplicando la condiciones de periodicidad, a través del teorema de Bloch:

$$\phi_3(z) = e^{iKd}(A_1 e^{ik_1(z-l)} + B_1 e^{-ik_1(z-l)}). \quad (1.7)$$

En cada interfaz se deben cumplir dos condiciones de contorno, la continuidad del desplazamiento atómico y la continuidad de las tensiones:

$$u_j(d_j) = u_{j+1}(d_j) \quad (1.8)$$

$$C_j \left. \frac{\partial u_j(d_j)}{\partial z} \right|_{x=d_j} = C_{j+1} \left. \frac{\partial u_{j+1}(d_j)}{\partial z} \right|_{x=d_j} \quad (1.9)$$

donde d_j es la posición de la interfaz entre las capas j y $j + 1$.

Reemplazando las soluciones propuestas para las capas 1, 2 y 3, y teniendo en cuenta que en este modelo se supone que la frecuencia ω está relacionada con el vector de ondas

k_j en cada capa, por una relación de dispersión lineal dada por $k_j v_j = \omega$,

$$A_1 + B_1 = A_2 + B_2 \quad (1.10)$$

$$C_1 k_1 (A_1 - B_1) = C_2 k_2 (A_2 - B_2) \quad (1.11)$$

$$A_2 e^{ik_2 a} + B_2 e^{-ik_2 a} = e^{iKd} (A_1 e^{-ik_1 b} + B_1 e^{ik_1 b}) \quad (1.12)$$

$$C_2 k_2 (A_2 e^{ik_2 a} - B_2 e^{-ik_2 a}) = C_1 k_1 e^{iKd} (A_1 e^{-ik_1 b} - B_1 e^{ik_1 b}) \quad (1.13)$$

Se tiene entonces un sistema homogéneo de cuatro ecuaciones con cuatro incógnitas; por lo que para obtener una solución no trivial su determinante debe ser cero. Esto lleva a una ecuación que relaciona la frecuencia ω y el vector de onda de la superred K [2]:

$$\cos(Kd) = \cos\left(\omega \frac{a}{v_1}\right) \cos\left(\omega \frac{b}{v_2}\right) - \frac{1}{2} \left(\frac{\rho_2 v_2}{\rho_1 v_1} + \frac{\rho_1 v_1}{\rho_2 v_2} \right) \text{sen}\left(\omega \frac{a}{v_1}\right) \text{sen}\left(\omega \frac{b}{v_2}\right) \quad (1.14)$$

La ec. 1.14 puede reescribirse como

$$\cos(Kd) = \cos\left[\omega \left(\frac{a}{v_1} + \frac{b}{v_2}\right)\right] - \frac{\epsilon^2}{2} \text{sen}\left(\omega \frac{a}{v_1}\right) \text{sen}\left(\omega \frac{b}{v_2}\right), \quad (1.15)$$

donde el parámetro ϵ está dado por:

$$\epsilon = \frac{\rho_2 v_2 - \rho_1 v_1}{(\rho_1 v_1 \rho_2 v_2)^{1/2}}. \quad (1.16)$$

Este parámetro da cuenta de la modulación acústica a través de la diferencia de impedancias acústicas de los dos materiales involucrados.

El primer término de la ec. 1.15 es el que genera el replegamiento de la relación de dispersión de los materiales *bulk*. Despreciando el término de la modulación acústica se obtiene:

$$\cos(Kd) = \cos\left[\omega \left(\frac{a}{v_1} + \frac{b}{v_2}\right)\right] \quad (1.17)$$

que resulta en,

$$Kd = \pm \omega \left(\frac{a}{v_1} + \frac{b}{v_2}\right) + 2\nu\pi \quad (1.18)$$

con ν un número entero. Esta expresión corresponde a una relación de dispersión replegada de la forma:

$$\omega = vK + \left(\frac{2\pi\nu v}{d}\right), \quad (1.19)$$

con una velocidad del sonido efectiva³ dada por [2]:

$$v = \frac{v_1 v_2}{(1 - \alpha)v_2 + \alpha v_1} \quad (1.20)$$

donde α es la relación de espesores:

$$\alpha = \frac{b}{a + b}. \quad (1.21)$$

³Es conveniente notar que la velocidad efectiva obtenida con la ec. 1.20 ajusta con una recta los centros de los minigaps en un diagrama de bandas extendido. En materiales con alto contraste de impedancias acústicas (con minigaps grandes), la velocidad efectiva de propagación de ondas acústicas de baja frecuencia (con q chicos) no coincide con el valor obtenido con esta aproximación, y debe calcularse a través del promedio armónico de las constantes elásticas en los dos materiales dado por: $\frac{a+b}{C_{eff}} = \frac{a}{C_1} + \frac{b}{C_2}$.

Material	Vel. del sonido [m/s]	Densidad [kg/m ³]	Parám. de red [nm]
GaAs	4726	5.32	0.565325
AIAs	5630	3.75	0.56611

Tabla 1.1: Valores de las propiedades físicas de los materiales utilizados en los ejemplos mostrados en el presente capítulo.

El término de la modulación acústica es el responsable del desdoblamiento de las ramas en el borde y centro de zona. Aproximadamente el ancho de los *gaps* esta dado por:

$$\Delta \sim 2\epsilon \frac{v}{d} \text{sen} \left[\frac{\nu\pi (1-\alpha)v_2 - \alpha v_1}{2(1-\alpha)v_2 + \alpha v_1} \right]. \quad (1.22)$$

Es interesante notar que a medida que se incrementa (disminuye) d , el ancho de los minigaps disminuye (aumenta); y que para

$$\alpha = \frac{v_2}{v_1 + v_2} \quad (1.23)$$

todos los minigaps de centro de zona (ν pares) desaparecen.

En la tabla 1.1 se detallan los valores de las propiedades físicas de los materiales utilizados en los ejemplos mostrados en el presente capítulo, para el cálculo de relaciones de dispersión, reflectividad acústica y campo fonónico.

1.2.3. Modos distribuidos, modos evanescentes y modos confinados

Se ha mostrado que no existen modos acústicos que tengan frecuencias dentro de los minigaps que se forman en estructuras periódicas. Asimismo, se ha visto que para toda energía fuera de los minigaps es posible definir un vector de onda k real. En estos casos las ondas acústicas en cada capa están descritas por modos distribuidos en toda la estructura, que pueden representarse como la suma dos ondas planas propagándose en sentidos inversos.

Suponiendo una estructura semi-infinita, si se envía desde el exterior una onda acústica con frecuencia dentro del minigap fonónico, no existen estados acústicos que permitan la transmisión de energía a través del cristal. En este caso, la amplitud de la onda incidente decae exponencialmente en la estructura. Cuando se dice que no existen estados en el minigap fonónico, en realidad se está indicando que no hay estados extendidos que respondan a la ecuación de onda. Estos modos evanescentes tienen una forma similar a los modos de Bloch extendidos, pero con un vector de onda complejo, cuya parte imaginaria causa el decaimiento en una región espacial $1/k$. Cuanto mayor es el contraste de impedancias acústicas, mayor será la parte imaginaria del vector de onda, y más fuerte su atenuación al entrar en la estructura. El comportamiento de los modos evanescentes es similar al observado en ondas electromagnéticas al incidir en espejos dieléctricos ideales, y como se verá más adelante, es el fundamento de los espejos y filtros de fonones acústicos.

Claramente, una estructura periódica unidimensional sólo puede localizar estados en una dimensión. La simetría traslacional de un cristal fonónico puede romperse introduciendo un defecto en la superred. Este defecto, por ejemplo, puede ser una capa de dicho cristal

fonónico con un espesor diferente al resto. Lejos de este defecto (en unidades de longitudes de onda), es esperable que los modos se parezcan a aquellos del cristal perfecto. Si se considera un modo de frecuencia ω_c dentro del minigap, no existen modos extendidos de frecuencia ω_c dentro de la red periódica perfecta. Sin embargo, el cambio en el espesor de una capa puede permitir la existencia de un modo confinado en la estructura. Si un modo tiene energía ω_c , entonces debe decaer exponencialmente en la parte periódica de la estructura. Una forma de analizar este caso es considerar que las superredes a cada lado del defecto actúan como espejos de fonones para bandas de energía específicas (las correspondientes a los minigaps). Cualquier vibración con vector de onda paralelo al eje de la modulación será reflejada infinitamente por los espejos y quedará confinada entre ellos. Dado que las vibraciones quedarán localizadas espacialmente, los modos serán cuantizados en frecuencias discretas. Aumentando (disminuyendo) el espesor del defecto puede disminuir (aumentar) la energía del modo, ya que la condición de confinamiento es menos (más) fuerte. Se denominará a este tipo de estructuras nanocavidades acústicas.

El último caso a considerar es el de los modos localizados en la superficie de un arreglo semi-infinito: los modos superficiales. Si la última capa es del material de menor impedancia acústica, entonces siempre habrá un modo confinado en la superficie. De hecho, habrá un modo confinado en cada minigap de la relación de dispersión. Por el contrario, si la última capa es del material de mayor impedancia acústica, no habrá modos confinados en la superficie [56, 57]. Sin embargo, es posible romper la periodicidad del arreglo semi-infinito cambiando el espesor de la última capa, para obtener un modo confinado entre el aire y el espejo fonónico que forma la superred, cualquiera sea el material en contacto con el aire. En el Cap. 3 se analizarán en detalle los modos confinados en una capa superficial.

1.3. Espejos distribuidos de fonones acústicos

En un sistema finito formado por la repetición de una bicapa, aparecerán zonas de alta reflectividad que pueden asociarse a los minigaps de los sistemas infinitos. Estas zonas de alta reflectividad son el producto de las sucesivas interferencias entre las ondas reflejadas y transmitidas en las interfaces del sistema. Denominaremos espejo distribuido (BR por las siglas en inglés de Reflector de Bragg) a toda multicapa formada por la repetición de una bicapa. La Fig. 1.7 muestra un esquema de un BR formado por diez períodos de GaAs/AlAs de 5.93/2.35 nm inmerso en un medio homogéneo de GaAs. Estos espesores corresponden aproximadamente a una relación $(3\lambda/4, \lambda/4)$ para una energía de 20 cm^{-1} . Estos espesores maximizan el segundo minigap del centro de la minizona de Brillouin [2].

En el panel inferior de la Fig. 1.8 se muestra la reflectividad de una estructura similar a la esquematizada en la Fig. 1.7 pero formada por 30 períodos, calculada mediante métodos matriciales (ver sección 2.1). Se pueden observar tres zonas de alta reflectividad, y oscilaciones a ambos costados de estas regiones. En adelante, se denominarán stop-bands a las zonas de alta reflectividad. La estructura de bandas de un arreglo infinito con la misma celda unidad se presenta en el panel superior de la figura. Los tres stop-bands se pueden asociar a los primeros tres minigaps de una estructura infinita. En adelante, la nomenclatura ZE[n] (ZC[n]) hará referencia al n-ésimo minigap de borde de zona (centro de zona),

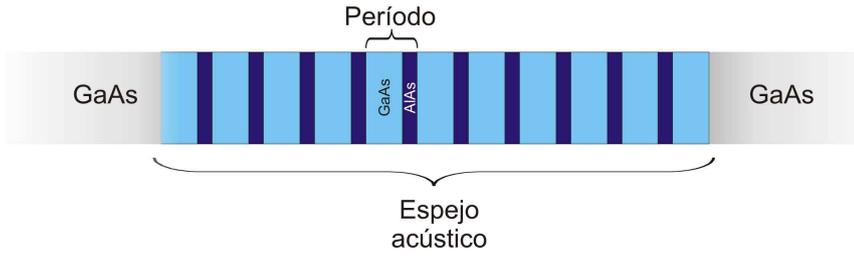


Figura 1.7: Esquema de un espejo de fonones acústicos o reflector de Bragg formado por 10 períodos de GaAs/AlAs inmerso en un medio homogéneo de GaAs.

a los stop-bands, o a los fonones replegados en esa región energética indistintamente. El cuarto minigap (ZC[2]) se encuentra cerrado y no se observan bandas de alta reflectividad en el espejo de Bragg.

En la Fig. 1.9 se muestra un detalle de la curva de reflectividad entre 15 y 25 cm^{-1} para un BR de 15 períodos. La selección de los espesores de las capas de cada material determina la energía de los minigaps, y el ancho relativo de los mismos. La maximización del primer minigap en el borde (centro) de la primera zona de Brillouin se logra con una relación de espesores dada por $d_{\text{GaAs}} = \lambda/4$ ($3\lambda/4$), $d_{\text{AlAs}} = \lambda/4$ ($\lambda/4$). El número de oscilaciones entre dos minigaps está determinado por el número de períodos que forman el BR. Los puntos A y C (19.04 y 20.95 cm^{-1}) indican las energías correspondientes a los fonones acústicos replegados en ZC[1] de baja y alta energía, respectivamente. El punto B (20.0 cm^{-1}) indica la energía del centro del stop-band.

En la región de máxima reflectividad, el campo fonónico se atenúa exponencialmente dentro del BR. En la Fig. 1.10 se grafica el desplazamiento atómico $|u(z)|^2$ en función de la posición en la estructura para las tres energías indicadas con A, B y C en la Fig. 1.9.

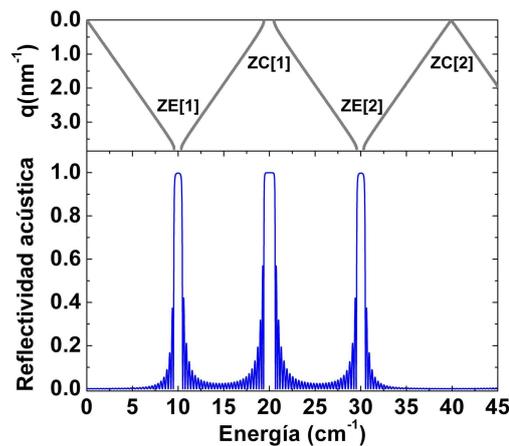


Figura 1.8: Panel superior: relación de dispersión en la primera zona de Brillouin de una superred de GaAs/AlAs de 5.93/2.35 nm. Panel inferior: Reflectividad acústica de un espejo de GaAs/AlAs de 30 períodos. Se distinguen tres *stop-bands* en 10, 20 y 30 cm^{-1}

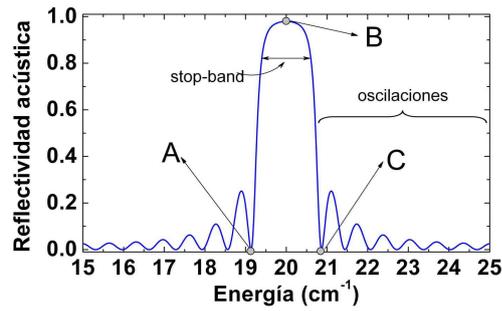


Figura 1.9: Reflectividad acústica de un espejo de Bragg de 15 períodos de GaAs/AlAs de 5.93/2.35 nm. Los puntos A y C indican las energías correspondientes a los primeros fonones acústicos replegados en centro de zona de baja y alta energía, respectivamente. El punto B indica la energía del centro del stopband.

En los paneles superiores se incluyen los perfiles de densidad para facilitar la identificación de los dos materiales utilizados. En los paneles de la izquierda se muestra la distribución del desplazamiento acústico en toda la estructura para las tres energías. Notar que para el fonón del centro del minigap (B) el campo fonónico se atenúa exponencialmente al entrar en la estructura, mientras que para los fonones replegados, se concentra principalmente en el centro del BR. En los paneles de la derecha se muestra un detalle del desplazamiento atómico en la región del centro de la estructura. Las líneas verticales punteadas indican las interfaces entre los dos materiales. Para el caso B se puede notar que las interfaces siempre coinciden con un máximo o un cero del desplazamiento acústico. Al igual que en superredes infinitas, los modos correspondientes a diferentes bandas concentran la energía en uno u otro material preferentemente. Observando la capa de AlAs alrededor de 95 nm se pueden señalar que, el modo de baja frecuencia (A) se localizará principalmente en las capas de GaAs (el desplazamiento acústico presenta un mínimo en la capa de AlAs), mientras que el de alta frecuencia (C) lo hará en las capas de AlAs, presentando un máximo.

En el panel de la izquierda de la Fig. 1.11 se grafica la reflectividad de un BR en función del número de períodos (N) que lo forman (indicado a la izquierda). Las curvas de reflectividad fueron desplazadas verticalmente para mayor claridad. Se puede notar que el stop-band se vuelve más definido a medida que se aumenta N , mientras que el ancho intrínseco no depende de este parámetro. Para $N \gg 1$, la reflectividad acústica está dada por [23]:

$$R = 1 - 4Z^{-2N} + O(Z^{-4N}) \quad (1.24)$$

donde Z es el contraste de impedancias acústicas de los materiales utilizados. Para el caso de un espejo formado por 10 períodos de GaAs/AlAs se obtiene una reflectividad de ~ 0.88 , mientras que para uno formado por 40 períodos, esta alcanza ~ 0.99999 . En el panel derecho de la Fig. 1.11 se compara la reflectividad en el centro del stop-band obtenida con el método de matrices de transferencia (cruces), con la reflectividad estimada utilizando la ecuación 1.24 (línea continua gris), en función del número de períodos que forman la estructura. Para un número de períodos mayor a 10, la ecuación 1.24 reproduce casi exactamente los

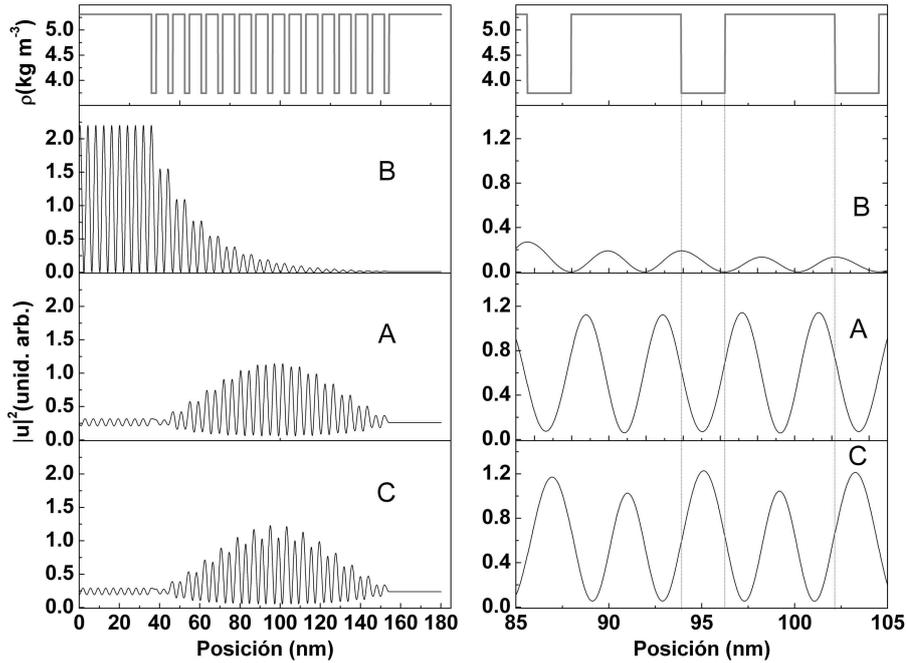


Figura 1.10: Izquierda: desplazamiento atómico para las tres energías indicadas en la Fig. 1.9. Derecha: detalle del desplazamiento atómico en la región central del espejo de fonones. Las líneas punteadas indican las interfaces entre dos materiales. En los paneles superiores se muestra el perfil de densidad de la estructura para identificar los materiales que forman el espejo de fonones.

valores calculados de reflectividad acústica. Es importante señalar que este valor depende del contraste de impedancias acústicas de los dos materiales utilizados, y del minigap elegido para realizar el cálculo.

1.4. Nanocavidades acústicas

La prohibición de la propagación de ondas con energías que caigan dentro de los *mini-gaps* hace que las superredes (SR) puedan ser utilizadas como espejos de alta reflectividad, similares a los espejos dieléctricos de luz. Una cavidad acústica consiste en un espaciador encerrado entre dos espejos de hipersonido [3, 4]. Las cavidades acústicas permiten modificar la densidad de estados fonónicos y localizar la distribución espacial de desplazamientos atómicos dentro de una estructura.

En la Fig. 1.12 se muestra el esquema de una cavidad de fonones. Se pueden observar dos reflectores de Bragg de GaAs/AlAs enfrentados, encerrando una cavidad de GaAs de espesor $l_c = \lambda$. La estructura completa se encuentra inmersa en un medio homogéneo de GaAs. Los parámetros relevantes en el diseño de una cavidad son los espesores de las capas (l), las densidades (ρ) y velocidades del sonido (v) de cada uno de los materiales. A continuación se analizarán las características generales, y la influencia de los espejos y del espaciador en el factor de calidad de las nanocavidades acústicas.

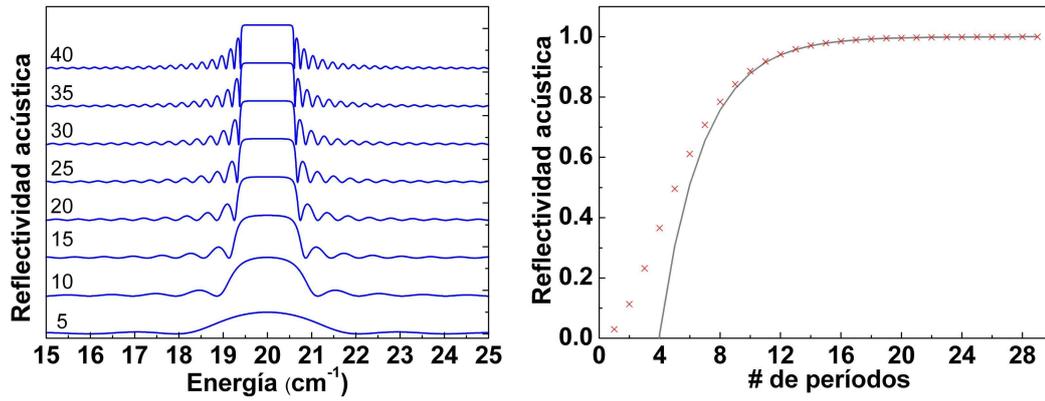


Figura 1.11: Panel izquierdo: reflectividad acústica de un espejo de GaAs/AlAs en función del número de períodos que forman la estructura (indicado a la izquierda); las curvas fueron desplazadas verticalmente para mayor claridad. Panel derecho: reflectividad en función del número de períodos que forman la estructura (cruces) y reflectividad calculada utilizando la ec. 1.24 (curva gris)

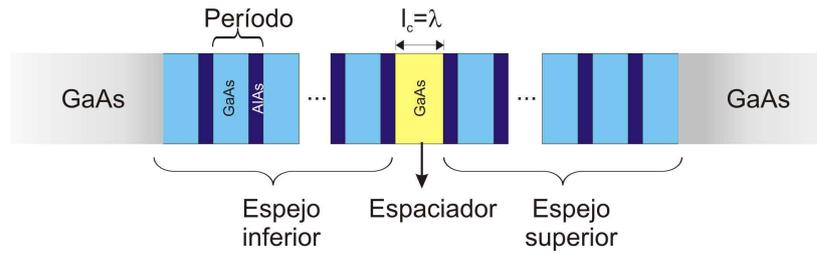


Figura 1.12: Esquema de una nanocavidad de fonones acústicos formada por dos reflectores de Bragg de GaAs/AlAs encerrando un espaciador de GaAs. l_c indica el espesor de la cavidad. La estructura completa se encuentra inmersa en un medio homogéneo de GaAs.

1.4.1. Características generales

En la Fig. 1.13 se grafica la reflectividad acústica de una cavidad formada por dos espejos de 10 períodos de GaAs/AlAs cada uno, y un espaciador de GaAs de 7.90 nm. Se puede notar que aparece un modo de alta transmisión en el centro del *stop-band* característico de los espejos. Este modo es resonante y corresponde a una onda estacionaria dentro de la cavidad. El ancho del espaciador (cavidad) determina la ubicación del modo dentro del *stop-band*. Para el caso particular de un modo centrado en el *stop-band*, el espesor de la cavidad está relacionado con la longitud de onda del fonón resonante (λ_0) mediante,

$$l_c = m \frac{\lambda_0}{2}, \quad (1.25)$$

donde m es un número entero.

Como se indicó en secciones anteriores, para maximizar el ancho del primer minigap

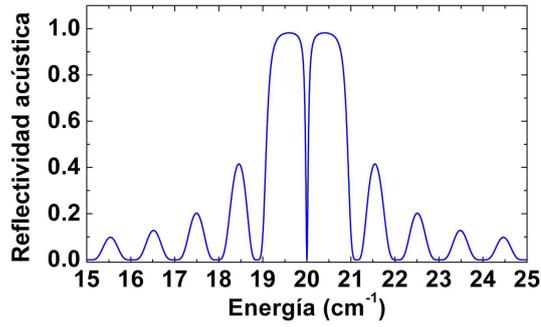


Figura 1.13: Reflectividad acústica de una nanocavidad acústica formada por dos BRs de 10 períodos de GaAs/AlAs de 5.93/2.35 nm cada uno, encerrando una cavidad de espesor λ . El mínimo de reflectividad en 20 cm^{-1} corresponde al modo acústico confinado de cavidad.

en el centro de la zona de Brillouin, deben cumplirse las condiciones,

$$l_1 = \lambda_1/4; l_2 = 3\lambda_2/4 \quad (1.26)$$

sobre los espesores (l_1 y l_2) de las capas que forman los espejos de la estructura. Debe notarse que en todos los casos λ_i indica la longitud de onda de un fonón de energía ω_0 en cada material.

Resulta útil expresar esta magnitud en función de ω_0 :

$$\lambda_i = \frac{v_i}{\omega_0} 10^{-3} \quad (1.27)$$

donde λ_i y la energía ω_0 están expresados en nm y THz respectivamente⁴, y v_i es la velocidad del sonido en medio i expresada en m/s .

En la Fig. 1.14 se muestra la distribución de campo fonónico en la misma estructura para una energía de 20.0 cm^{-1} correspondiente al modo de cavidad. Se incluye el perfil de densidades para poder realizar una identificación espacial de cada una de las capas. El fonón se encuentra confinado y amplificado dentro de la cavidad, y presenta un decaimiento exponencial en los BR. El factor de amplificación (~ 40 en este caso) está determinado por la reflectividad de los espejos que forman la estructura.

En los siguientes apartados se estudiará la influencia del número de períodos que forman los espejos y cómo varía la ubicación del modo a medida que se desintonizan los espejos respecto del espaciador.

1.4.2. Influencia de la reflectividad de los espejos

Extendiendo ecuaciones del ámbito de la óptica al sonido puede verse que el ancho Γ del modo confinado está dado por la siguiente expresión [58]:

$$\Gamma = -\frac{\hbar v_c \ln(\sqrt{R_i R_d})}{l_c + l_{BR}} \quad (1.28)$$

⁴1 THz $\approx 33.3564095 \text{ cm}^{-1}$

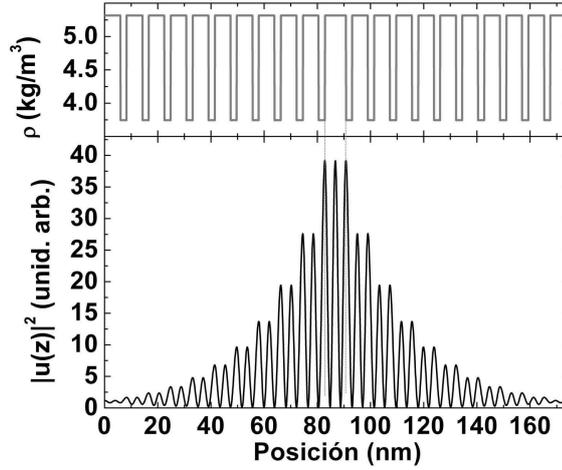


Figura 1.14: $|u(z)|^2$ en función de la posición en la estructura. El campo se encuentra amplificado en la región de la cavidad (~ 86.8 nm). Se incluye el perfil de densidades para facilitar la localización de los dos materiales utilizados. Las líneas verticales indican la posición del espaciador.

donde R_i y R_d son las reflectividades de los espejos de la izquierda y derecha respectivamente, v_c es la velocidad del sonido en el espaciador, l_c es el ancho del mismo, y l_{BR} es la longitud de penetración en los espejos, que resulta independiente de la cantidad de períodos que los forman.

El ancho del modo se puede relacionar con el tiempo de vida τ del fonón dentro de la cavidad según:

$$\tau = \frac{\hbar}{\Gamma} = -\frac{l_c + l_{BR}}{v_c \ln(\sqrt{R_i R_d})}. \quad (1.29)$$

De esta magnitud resulta útil derivar dos parámetros adicionales que ayudan a caracterizar una cavidad acústica: la longitud total recorrida por el fonón dentro de la cavidad (L_t), y el número de rebotes que realiza el fonón (N_t) dentro de una cavidad antes de lograr escaparse hacia los espejos. L_t y N_t están dados por:

$$L_t = \tau v_c = -\frac{l_c + l_{BR}}{\ln(\sqrt{R_i R_d})} \quad (1.30)$$

$$N_t = \frac{L_t}{L_{ef}} = -\frac{1}{\ln(\sqrt{R_i R_d})}. \quad (1.31)$$

Se puede notar que tanto τ como L_t y N_t aumentan con la reflectividad de los espejos utilizados, y esta, a su vez, aumenta con el número de períodos que forman el espejo. Para estos casos, suponiendo $R_i = R_d = R$ resulta $N_t \approx 10$ para espejos de 10 períodos y $N_t \approx 1590$ para espejos de 25 períodos. En la Fig. 1.15 se muestra la reflectividad acústica de una cavidad formada por dos espejos de GaAs/AlAs y una cavidad de espesor λ , en función del número de períodos que forman cada espejo (indicado a la izquierda). En todos los casos se puede observar el modo de la cavidad centrado en el *stop-band* de los espejos. Debe notarse cómo a medida que aumenta este número el modo de la cavidad se hace más

angosto, aumentando la vida media del fonón dentro de la estructura. Asimismo, se definen mejor los límites de los *stop-bands*, y aumenta el número de oscilaciones.

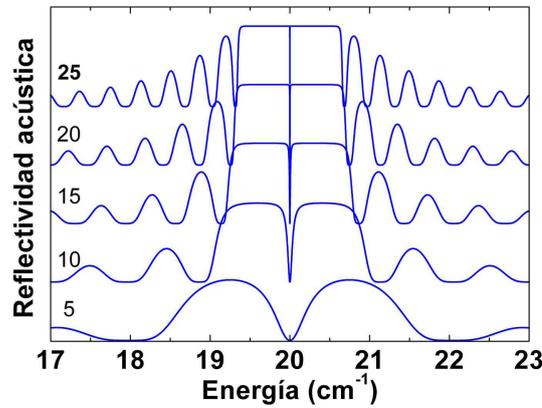


Figura 1.15: Reflectividad acústica de una cavidad formada por dos espejos de GaAs/AlAs y una cavidad de espesor λ en función del número de períodos que forman cada espejo (indicado a la izquierda). Las curvas fueron desplazadas verticalmente para mayor claridad.

1.4.3. Influencia del espaciador acústico

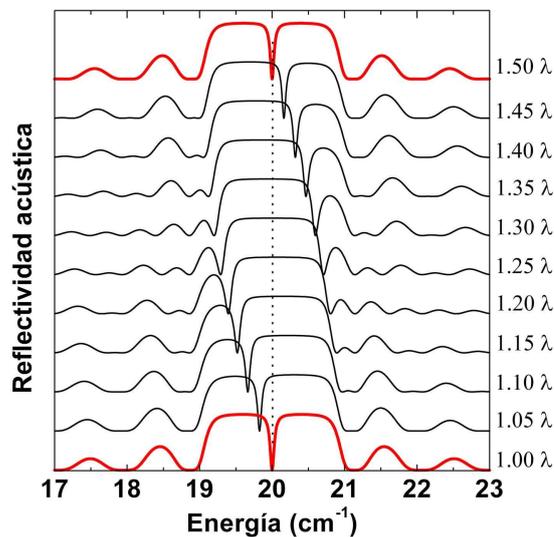


Figura 1.16: Reflectividad acústica de una cavidad formada por dos espejos de GaAs/AlAs y una cavidad de espesor $n\lambda/2$ en función de n (indicado a la derecha). Con línea gruesa se indican las reflectividades de las estructuras en las que el modo coincide con el centro del *stop-band*. Las curvas fueron desplazadas verticalmente para mayor claridad.

En la Fig. 1.16 se muestra la reflectividad acústica de una cavidad formada por dos espejos de GaAs/AlAs de 10 períodos cada uno y un espaciador, en función del ancho de

este último. En el margen derecho de la figura se indica el espesor de la cavidad en unidades de λ , que se varía de 1.0 a 1.5. Con línea más gruesa se indican las dos estructuras en donde el modo de la cavidad coincide con el centro del *stop-band* de los espejos. Aumentando el espesor de la cavidad, el modo se desplaza por el *stop-band* hacia regiones de menor energía. Esto puede entenderse teniendo en cuenta que la cavidad confina una onda de longitud λ ; aumentando el espesor de la cavidad, se confina una onda de mayor longitud de onda y por lo tanto de menor energía. La posición del *stop-band* permanece fija, dado que sólo depende de los parámetros de los espejos. A partir de un espesor de 1.25λ se observa como un modo de un orden superior entra al *stop-band* desde el borde de altas energías. Dos modos consecutivos tienen distinta paridad respecto del centro de la estructura, y darán origen a espectros Raman claramente diferenciables.

Una estructura con dos BR optimizados para una longitud de onda λ_0 encerrando una cavidad de espesor $n\lambda_0/2$ da lugar a un modo confinado centrado en el *stop-band* de los espejos. Sin embargo, nada se dijo respecto del efecto de aumentar arbitrariamente el valor de n . En la Fig. 1.17 se muestran las reflectividades de diez cavidades, formadas por dos espejos de 10 períodos de GaAs/AlAs de $(3\lambda/4, 1\lambda/4)$, y un espaciador de GaAs de espesor $n\lambda/2$, donde λ corresponde a una energía de 20 cm^{-1} y n indica el orden del modo y se varía de 1 a 10. En todos los casos se observa que el modo de las cavidades se ubica en 20 cm^{-1} (indicado con una flecha vertical). De la misma manera la posición del *stop-band* no cambia. Se puede observar que los bordes del espejo se encuentran mejor definidos a medida que aumenta el tamaño de la cavidad. En el cuadro interior se muestra un detalle de la reflectividad acústica en el rango de energías $19.85\text{-}20.15 \text{ cm}^{-1}$; con una flecha vertical se indica la posición del modo, la flecha curva indica la dirección de aumento del espesor de la cavidad. Claramente se puede notar que a medida que aumenta el tamaño del espaciador, el ancho del modo disminuye, al mismo tiempo que la reflectividad de las regiones laterales aumenta.

Esto puede explicarse observando la ec. 1.28:

$$\Gamma = -\frac{\hbar v_c \ln(\sqrt{R_i R_d})}{l_c + l_{BR}}, \quad (1.32)$$

donde se puede notar que el ancho del espaciador l_c aparece en el denominador sumado a la longitud de penetración en los espejos (l_{DBR}). De esta manera, de la ec. 1.32 queda claro que si se aumenta el contraste de impedancias acústicas de los materiales que forman los espejos, o si se aumenta el espesor de la cavidad, el ancho del modo disminuye. También resulta ilustrativo estudiar el efecto del ancho del espaciador en la expresión del tiempo de vida media de los fonones dentro de la cavidad (ec. 1.29):

$$\tau = -\frac{l_c + l_{BR}}{v_c \ln(\sqrt{R_i R_d})}. \quad (1.33)$$

Aquí resulta evidente que aumentando el espesor de la cavidad, aumenta el tiempo de permanencia del fonón dentro de la cavidad. En particular si $l_c \gg l_{BR}$:

$$\tau \approx -\frac{l_c}{v_c \ln(\sqrt{R_i R_d})} \propto l_c. \quad (1.34)$$

Conceptualmente, la probabilidad de escape de la cavidad es una propiedad de los espejos a través de R . Si el tiempo de tránsito por la cavidad l_c/v_c se aumenta, se está aumentando el tiempo de ida y retorno a un espejo para *intentar* escapar. Por lo tanto, aumenta τ y consecuentemente disminuye Γ .

Además de este cambio observado en el ancho del modo (es decir en la *finesse* de la cavidad), aumentando el tamaño de la cavidad es posible aumentar el número de modos confinados dentro del *stop-band*. [3, 59]

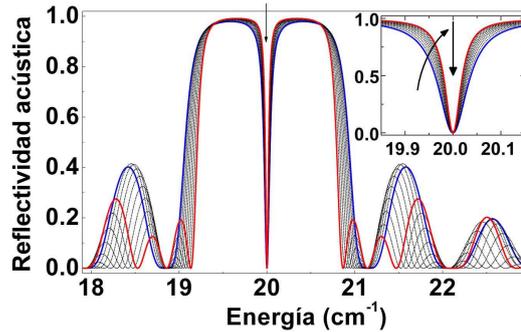


Figura 1.17: Reflectividad acústica de una nanocavidad sintonizada a 20 cm^{-1} con un espaciador de $n\lambda/2$ variando n de 1 a 10 ($\lambda=7.90 \text{ nm}$). Los espejos están formados por 10 períodos de GaAs/AlAs de $5.93/2.35 \text{ nm}$ cada uno.

El contraste en las propiedades acústicas de los materiales que forman los espejos distribuidos y el espaciador, también determinará las características del resonador de fonones. El espesor λ es independiente de la densidad. De esta manera es posible modificar el contraste de impedancias acústicas sin modificar los espesores involucrados. En la Fig. 1.18 se muestra la reflectividad acústica de una nanocavidad sintonizada a 20 cm^{-1} con un espaciador de $\lambda=7.90 \text{ nm}$, en función de la densidad del material que forma el espaciador. Este parámetro se varía de 0.1 a 2.0 veces el valor de la densidad nominal del GaAs. En línea continua azul (negra) se indica la curva correspondiente a una densidad con un factor 2 (1). La flecha indica el sentido de crecimiento de la densidad. En el cuadro interior se muestra un detalle de la región correspondiente al modo confinado. Se puede notar que al variar la densidad, la posición del modo no se ve afectada. Sin embargo existen otras modificaciones importantes en las curvas de reflectividad: 1) El ancho del modo disminuye al aumentar la densidad, aunque de manera menos notoria que cuando se modifica el espesor; 2) El ancho del stop-band se ve levemente modificado; 3) El aspecto general de las oscilaciones de tamaño finito a los costados del stop-band se ven fuertemente afectados por el cambio de la densidad en el espaciador. Las curvas punteadas (de trazos) en la Fig. 1.18 corresponden a impedancias acústicas mayores (menores) a la impedancia acústica del AlAs. Es importante señalar que en el caso de un espaciador con una impedancia acústica menor que la de cualquiera de los materiales de los BR, las posiciones de las oscilaciones cambian.

En este capítulo se presentaron los conceptos básicos de nanofonónica en una dimensión. Se estudiaron en detalle los sistemas formados por el apilamiento periódico de dos materiales, y se derivaron las expresiones analíticas que permiten explicar las caracterís-

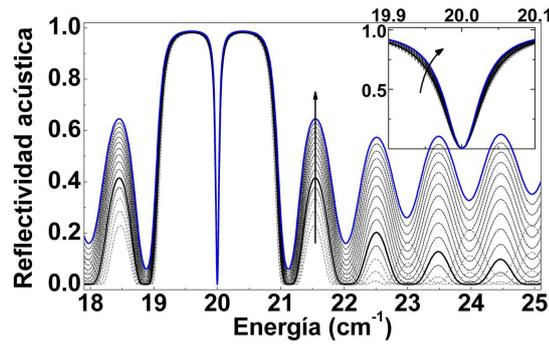


Figura 1.18: Reflectividad acústica de una nanocavidad sintonizada a 20 cm^{-1} con un espaciador de $\lambda=7.90 \text{ nm}$ en función de la densidad del material que forma el espaciador. Este parámetro se varía de 0.1 a 2.0 veces el valor de la densidad nominal del GaAs. Los espejos están formados por 10 períodos de GaAs/AlAs de $5.93/2.35 \text{ nm}$ cada uno.

ticas principales de los minigaps acústicos. Dentro de estas bandas de energía no existen vectores de onda que permitan el transporte de energía dentro de la estructura. De esta manera, es posible utilizar estas superredes como espejos de hipersonido. También se ha señalado que la presencia de defectos o superficies libres en el arreglo periódico puede dar origen a la localización de modos discretos dentro de la estructura. A lo largo de las últimas dos secciones se presentaron en detalle las características más importantes de los espejos de fonones y de las nanocavidades acústicas, resaltando cuáles son los parámetros relevantes para el diseño de estos dispositivos. Estos conceptos serán los pilares fundamentales de los conceptos que se desarrollarán en el resto de la tesis. En el siguiente capítulo se presentarán las técnicas experimentales utilizadas, y los resultados típicos obtenidos en estructuras simples. Asimismo se presentarán en términos generales los modelos y métodos de simulación implementados para estudiar los resultados experimentales obtenidos.

Capítulo 2

Luz e hipersonido: métodos experimentales y simulación numérica

La primera evidencia de dispersión Raman en una superred fue reportada por Colvard *et al.* [60] en 1980. A partir de ese momento se publicaron numerosos trabajos dedicados al estudio de superredes [2], arreglos no-periódicos (secuencias de Fibonacci, Thue-Morse, etc) [2, 61], y cavidades acústicas [4] utilizando dispersión Raman. Parte del diseño y estudio de los dispositivos para hipersonido de esta tesis será realizado a través de experimentos de dispersión Raman, y su simulación numérica.

Por otro lado, en 1984 Thomsen *et al.* [14] establecen las bases de la acústica de picosegundos, y demuestran experimentalmente que es posible generar y detectar ondas elásticas de alta frecuencia utilizando láseres ultra-rápidos. El experimento propuesto consiste en generar las ondas elásticas en una muestra con un pulso láser intenso; estas ondas elásticas modulan las propiedades ópticas de los materiales, y un segundo pulso láser detectará los cambios en la reflectividad óptica de la estructura que se está estudiando. La resolución temporal en este tipo de experimentos está limitada por el ancho del pulso láser, y por lo tanto es posible detectar ultra-altas frecuencias en el dominio temporal, abriendo un nuevo campo de investigación en ultrasonido. El estudio de la dinámica de fonones acústicos, y la manipulación del hipersonido en el dominio temporal se realizarán utilizando las técnicas de acústica de picosegundos.

En este capítulo se revisarán los conceptos básicos de las técnicas utilizadas para la caracterización óptica de los sistemas estudiados. Se presentan los modelos físicos, y las herramientas de cálculo para simular los resultados experimentales, y se describen los dispositivos utilizados en experimentos de dispersión Raman, y de generación coherente de fonones acústicos utilizando láseres ultra-rápidos. Asimismo, se describen resultados anteriores en el estudio de superredes de materiales semiconductores utilizando las mismas técnicas.

Este capítulo se encuentra dividido en cuatro secciones principales: en la Sec. 1 se describe el método de las matrices de transferencia que es aplicado para el cálculo de

la reflectividad acústica de multicapas, y de los desplazamientos acústicos dentro de las estructuras. El desplazamiento acústico será la función más importante a lo largo de este trabajo y será utilizada para la simulación numérica de todos los experimentos. En la Sec. 2 se explica el proceso de fotoluminiscencia que se utilizará como herramienta de caracterización de los niveles electrónicos de las muestras. En la Sec. 3 se describen los procesos de dispersión Raman, el modelo fotoelástico y el dispositivo experimental utilizado. Finalmente, en la Sec. 4 se presentan los experimentos de generación de fonones acústicos coherentes y se describen las configuraciones experimentales, los equipamientos utilizados, y los métodos de simulación implementados.

2.1. Cálculo del desplazamiento atómico y de la reflectividad acústica

Como se indicó en el capítulo anterior, la propagación de ondas acústicas longitudinales en una estructura unidimensional está regida por la ec. 1.1:

$$\frac{\partial}{\partial t} \left[\rho(z) \frac{\partial u(z, t)}{\partial t} \right] = \frac{\partial}{\partial z} \left[C(z) \frac{\partial u(z, t)}{\partial z} \right], \quad (2.1)$$

donde $\rho(z)$, $C(z)$ y $u(z, t)$ son la densidad, la constante de fuerza y el desplazamiento atómico respectivamente.

En el caso de una multicapa crecida a lo largo del eje z , es decir, una estructura inhomogénea en z , las soluciones de la ecuación de ondas pueden obtenerse con el método de las matrices de transferencia [62], que se detalla a continuación.

Se considera una onda plana incidiendo sobre la estructura, con vector de onda k , tal que $\omega = \omega(k)$. Para cada material se considerará $\omega = kv$, donde v es la velocidad del sonido en dicho material. En cada punto de la estructura el campo fonónico puede descomponerse en dos ondas planas propagándose de izquierda a derecha ($\phi^+ \propto e^{ikz}$), y de derecha a izquierda ($\phi^- \propto e^{-ikz}$) según:

$$\phi = \phi^+ + \phi^-. \quad (2.2)$$

Se asociará a cada capa una matriz de transferencia A_D de 2×2 que relaciona el vector $(\phi^+, \phi^-)_0$ del comienzo de una capa con el vector $(\phi^+, \phi^-)_f$ del final de la misma; y a cada interfaz una matriz A_I que relaciona los vectores a cada lado de la interfaz. Para una capa de espesor a la matriz de transferencia toma la forma:

$$A_D = \begin{pmatrix} e^{-ika} & 0 \\ 0 & e^{ika} \end{pmatrix} \quad (2.3)$$

En cada interfaz deben cumplirse las condiciones de contorno de continuidad de las deformaciones y de los desplazamientos atómicos. Suponiendo que (ϕ_I^+, ϕ_I^-) y (ϕ_D^+, ϕ_D^-) son los vectores a la izquierda y derecha de una interfaz, y aplicando las condiciones de contorno planteadas en las ecs. 1.8 y 1.9, se obtiene:

$$\phi_I^+ + \phi_I^- = \phi_D^+ + \phi_D^- \quad (2.4)$$

$$C_I k_I (\phi_I^+ - \phi_I^-) = C_D k_D (\phi_D^+ - \phi_D^-), \quad (2.5)$$

o en forma matricial,

$$\begin{pmatrix} 1 & 1 \\ C_I k_I & -C_I k_I \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \phi_I^+ \\ \phi_I^- \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 1 & 1 \\ C_D k_D & -C_D k_D \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \phi_D^+ \\ \phi_D^- \end{pmatrix}. \quad (2.6)$$

Despejando (ϕ_I^+, ϕ_I^-) se obtiene:

$$\begin{pmatrix} \phi_I^+ \\ \phi_I^- \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 1 & 1 \\ C_I k_I & -C_I k_I \end{pmatrix}^{-1} \begin{pmatrix} 1 & 1 \\ C_D k_D & -C_D k_D \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \phi_D^+ \\ \phi_D^- \end{pmatrix} \quad (2.7)$$

$$= \frac{1}{2C_I k_I} \begin{pmatrix} C_I k_I & 1 \\ C_I k_I & -1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 & 1 \\ C_D k_D & -C_D k_D \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \phi_D^+ \\ \phi_D^- \end{pmatrix} \quad (2.8)$$

$$= \frac{1}{2C_I k_I} \begin{pmatrix} C_I k_I + C_D k_D & C_I k_I - C_D k_D \\ C_I k_I - C_D k_D & C_I k_I + C_D k_D \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \phi_D^+ \\ \phi_D^- \end{pmatrix} \quad (2.9)$$

Utilizando la definición de impedancia acústica $Z = \rho v$, y teniendo en cuenta que $k = \omega/v$, y $C = \rho v^2$:

$$\begin{pmatrix} \phi_I^+ \\ \phi_I^- \end{pmatrix} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 1 + Z_D/Z_I & 1 - Z_D/Z_I \\ 1 - Z_D/Z_I & 1 + Z_D/Z_I \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \phi_D^+ \\ \phi_D^- \end{pmatrix}. \quad (2.10)$$

Con lo que la matriz de transferencia A_I de una interfaz queda definida por,

$$A_I = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 1 + Z_D/Z_I & 1 - Z_D/Z_I \\ 1 - Z_D/Z_I & 1 + Z_D/Z_I \end{pmatrix} \quad (2.11)$$

La matriz de transferencia de una multicapa toma la siguiente forma:

$$A_{est}(\omega) = \prod_{j=1}^N A_{Dj}(\omega) A_{Ij}(\omega), \quad (2.12)$$

donde N es el número total de capas. Eligiendo las condiciones iniciales que corresponden a un haz monocromático incidiendo desde la izquierda ($z \rightarrow -\infty$), los coeficientes de reflexión y transmisión de la estructura quedan determinados por el siguiente sistema lineal:

$$\begin{pmatrix} 1 \\ r(\omega) \end{pmatrix} = A_{est}(\omega) \begin{pmatrix} t(\omega) \\ 0 \end{pmatrix} \quad (2.13)$$

en donde se asume que la onda incidente tiene amplitud 1, que no hay una onda reflejada de la última capa y que r y t son los coeficientes de reflexión y transmisión de la estructura completa respectivamente. Resolviendo para r y t ,

$$r(\omega) = \frac{a_{21}(\omega)}{a_{11}(\omega)} \quad (2.14)$$

$$t(\omega) = \frac{1}{a_{11}(\omega)} \quad (2.15)$$

De esta manera $|r(\omega)|^2$ es la reflectividad de la estructura para una frecuencia ω . En el Cap. 4 se hará un extensivo uso de este método de cálculo para la optimización de filtros y dispositivos para hipersonido. Por otro lado, la reflectividad acústica será una herramienta

fundamental para el estudio de estructuras formadas por cavidades acústicas acopladas en el Cap. 6.

Tanto en el estudio de la evolución temporal de un paquete de ondas, como en el cálculo de la sección eficaz Raman (Sec. 2.3.2) es necesario conocer las soluciones estacionarias, es decir, los desplazamientos atómicos en función de la posición dentro de la estructura. Sabiendo que dentro de cada capa las soluciones toman la forma:

$$u(z, \omega) = A_j e^{ik_j z} + B_j e^{-ik_j z}, \quad (2.16)$$

y utilizando el método de matrices de transferencia para calcular los coeficientes A_j y B_j es posible conocer las soluciones estacionarias en toda la estructura. Una forma alternativa de cálculo resulta de definir como A_{est}^z a la matriz de transferencia desde el punto z hasta el final de la estructura, con lo que se obtiene:

$$\begin{pmatrix} \phi^+(\omega, z) \\ \phi^-(\omega, z) \end{pmatrix} = A_{est}^z(\omega) \begin{pmatrix} t(\omega) \\ 0 \end{pmatrix}; \quad (2.17)$$

y el desplazamiento resulta:

$$\phi(\omega, z) = \phi^+(\omega, z) + \phi^-(\omega, z). \quad (2.18)$$

Debe notarse que cualquier solución de la ecuación de ondas puede expresarse como combinación lineal de las soluciones estacionarias. Por otro lado, cabe destacar que una vez que se tiene calculada la matriz de transferencia de la estructura es posible obtener las soluciones estacionarias correspondientes a otro conjunto de condiciones de contorno. Este procedimiento será utilizado para obtener los desplazamientos atómicos en muestras que presentan una superficie libre, por ejemplo en el cálculo de la sección eficaz Raman [5, 63].

Para el estudio de la dinámica de fonones acústicos es útil conocer los desplazamientos atómicos en el dominio temporal. A continuación se presentan los cálculos para simular la evolución temporal de un paquete de ondas acústicas dentro de una estructura unidimensional [37, 41].

En el caso de una excitación pulsada, el pulso de sonido en el dominio espectral está descrito por:

$$\phi_g(\omega, z) = \phi(\omega, z)g(\omega), \quad (2.19)$$

donde $g(\omega)$ es la distribución espectral del pulso y se desprecia la dispersión espacial. Esta condición es equivalente a considerar a tiempo cero un pulso localizado espacialmente en un plano perpendicular a la dirección de propagación y ubicado en $z = 0$. En todos los casos considerados en el presente trabajo $g(\omega)$ es una distribución normal dada por:

$$g(\omega) = \frac{\hbar}{\sqrt{\pi}\Delta} \exp \left[- \left(\frac{\hbar\omega - E_0}{\Delta} \right)^2 \right], \quad (2.20)$$

en donde 2Δ y E_0 son el ancho y la media de la distribución gaussiana. La evolución temporal de un paquete de ondas, puede calcularse según [37, 41]:

$$\phi_g(z, t) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \phi_g(\omega, z) e^{-i\omega t} d\omega. \quad (2.21)$$

Esta herramienta de cálculo se utilizará extensivamente en el Cap. 3 para el estudio de superredes, y en Cap. 6 para el estudio de sistemas formados por cavidades acústicas acopladas.

En el análisis y diseño de dispositivos para hipersonido puede resultar necesario considerar la evolución temporal de un paquete de ondas generado en un punto arbitrario de la muestra, ya sea la cara derecha incidiendo desde $z \rightarrow +\infty$, o en un punto interno. Un detalle de la implementación de este tipo de cálculos se puede encontrar en la Ref. [59].

2.2. Fotoluminiscencia

Se denomina luminiscencia a la emisión de luz por decaimiento radiativo de los electrones de niveles de mayor energía a estados de menor energía. Dependiendo de la clase de excitación que produce la luminiscencia se le asignan diferentes nombres. En particular, si la excitación se realiza con luz, el proceso se denomina fotoluminiscencia.

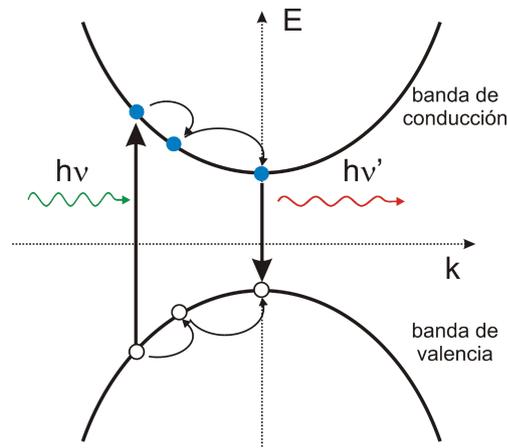


Figura 2.1: Proceso de fotoluminiscencia en un semiconductor. Un fotón incidente de energía $h\nu$ crea un par electrón-hueco en las bandas del semiconductor. Tanto el e^- como el h^+ se relajan y termalizan hacia estados de menor energía en sus respectivas bandas y finalmente se recombinan emitiendo un fotón de energía $h\nu'$.

En la Fig. 2.1 se presenta un esquema del proceso de luminiscencia en un semiconductor. Se pueden observar dos bandas, una de valencia (abajo) y una de conducción (arriba). En el proceso de luminiscencia un fotón incidente de energía mayor a la energía de la brecha prohibida (*gap*) promueve electrones de la banda de valencia a la banda de conducción, generando pares electrón-hueco. Estos pares se relajan y termalizan de forma no-radiativa hacia estados de menor energía. Finalmente se recombinan emitiendo fotones de menor energía que la del fotón incidente. Si la termalización de los electrones y huecos ha sido completa, la energía del fotón emitido sólo depende de los estados finales del electrón y del hueco en las bandas de valencia y conducción respectivamente, por lo que no tiene correlación con la energía del fotón incidente. Si la energía del fotón incidente es menor que la energía del *gap* del semiconductor, no se crean pares electrón-hueco, y se dice que el fotón se encuentra en la región de transparencia del material. La energía de los fotones emitidos

tiene información de los *gaps* energéticos de los semiconductores como también de otros efectos en la estructura producidos por defectos, impurezas, etc. [1, 64]. Debido a efectos de confinamiento, los niveles de energía en un pozo cuántico o en una superred son fuertemente dependientes de los espesores involucrados [1]. Haciendo uso de esta propiedad, en el Cap. 4 se estudiarán las distribuciones de espesores de nanoestructuras formadas por un arreglo de no-periódico de capas de GaAs/AlAs, y en el Cap. 5 se estudiarán las variaciones de espesores en una muestra crecida con gradiente.

2.3. Dispersión Raman

Cuando un fotón incide sobre una molécula, esta puede dispersarlo o absorberlo. La mayor parte de la luz dispersada será de la misma frecuencia que la luz incidente. A este fenómeno se lo denomina dispersión *Rayleigh* o dispersión elástica de luz. Una pequeña fracción de la luz será dispersada de manera inelástica, con frecuencia diferente a la de los fotones incidentes. La diferencia de energía entre la luz incidente y la luz dispersada será proporcional a la energía de excitación de las moléculas dispersoras. Este proceso de intercambio de energía entre las moléculas dispersoras y la luz incidente es lo que se denomina efecto *Raman* [1, 65]. Esta sección se centra en la dispersión inelástica de la luz por fonones.

A continuación se presenta un modelo macroscópico de la dispersión inelástica de luz. De este modelo se deducirán las leyes de conservación que rigen un proceso de dispersión Raman por fonones [1]. Se considera un medio isotrópico e infinito de susceptibilidad eléctrica χ . Cuando un campo electromagnético descrito por

$$\mathbf{F}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{F}_i(\mathbf{k}, \omega) \cos(\mathbf{k}_i \cdot \mathbf{r} - \omega_i t) \quad (2.22)$$

está presente en este medio, se induce una polarización \mathbf{P} dada por:

$$\mathbf{P}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{P}_i(\mathbf{k}, \omega) \cos(\mathbf{k}_i \cdot \mathbf{r} - \omega_i t), \quad (2.23)$$

donde la frecuencia y el vector de onda son los mismos que los de la radiación incidente, y la amplitud está dada por:

$$\mathbf{P}(\mathbf{k}_i, \omega_i) = \chi(\mathbf{k}_i, \omega_i) \mathbf{F}_i(\mathbf{k}_i, \omega_i). \quad (2.24)$$

Los modos normales de vibración de un semiconductor cristalino están cuantizados en fonones, y los desplazamientos atómicos $\mathbf{Q}(\mathbf{r}, t)$ asociados con un fonón pueden ser expresados como ondas planas:

$$\mathbf{Q}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{Q}(\mathbf{q}, \omega_0) \cos(\mathbf{q}_i \cdot \mathbf{r} - \omega_0 t), \quad (2.25)$$

con vector de onda \mathbf{q} y frecuencia ω_0 . Se hace una aproximación adiabática, es decir, se asume que los electrones se acomodan al movimiento del sólido en forma instantánea comparado con el tiempo de movimiento de los iones. De este modo la función dieléctrica puede expresarse como un desarrollo de Taylor en los desplazamientos $\mathbf{Q}(\mathbf{r}, t)$:

$$\chi(\mathbf{k}_i, \omega_i, \mathbf{Q}) = \chi_0(\mathbf{k}_i, \omega_i) + \left. \frac{\partial \chi}{\partial \mathbf{Q}} \right|_0 \mathbf{Q}(\mathbf{r}, t) + \dots \quad (2.26)$$

donde $\chi_0(\mathbf{k}_i, \omega_i)$ es la susceptibilidad eléctrica del medio sin fonones presentes. El segundo término representa una susceptibilidad oscilatoria inducida por la onda $\mathbf{Q}(\mathbf{r}, t)$. Sustituyendo 2.26 en 2.24 se puede expresar la polarización $\mathbf{P}(\mathbf{r}, t, \mathbf{Q})$ del medio en presencia de vibraciones atómicas como:

$$\mathbf{P}(\mathbf{r}, t, \mathbf{Q}) = \mathbf{P}_0(\mathbf{r}, t) + \mathbf{P}_{ind}(\mathbf{r}, t, \mathbf{Q}) \quad (2.27)$$

donde,

$$\mathbf{P}_0(\mathbf{r}, t) = \chi_0(\mathbf{k}_i, \omega_i) \mathbf{F}_i(\mathbf{k}_i, \omega_i) \cos(\mathbf{k}_i \cdot \mathbf{r} - \omega_i t) \quad (2.28)$$

es una polarización vibrando en fase con la radiación incidente, y

$$\mathbf{P}_{ind}(\mathbf{r}, t, \mathbf{Q}) = \left. \frac{\partial \chi}{\partial \mathbf{Q}} \right|_0 \mathbf{Q}(\mathbf{r}, t) \mathbf{F}_i(\mathbf{k}_i, \omega_i) \cos(\mathbf{k}_i \cdot \mathbf{r} - \omega_i t) \quad (2.29)$$

es una onda de polarización inducida por el fonón. Para determinar la frecuencia y vector de onda de la polarización inducida, 2.29 se reescribe como:

$$\begin{aligned} \mathbf{P}_{ind}(\mathbf{r}, t, \mathbf{Q}) &= \left. \frac{\partial \chi}{\partial \mathbf{Q}} \right|_0 \mathbf{Q}(\mathbf{q}, \omega_0) \cos(\mathbf{q} \cdot \mathbf{r} - \omega_0 t) \mathbf{F}_i(\mathbf{k}_i, \omega_i) \cos(\mathbf{k}_i \cdot \mathbf{r} - \omega_i t) \quad (2.30) \\ &= \frac{1}{2} \left. \frac{\partial \chi}{\partial \mathbf{Q}} \right|_0 \mathbf{Q}(\mathbf{q}, \omega_0) \mathbf{F}_i(\mathbf{k}_i, \omega_i) \cos[(\mathbf{k}_i + \mathbf{q}) \cdot \mathbf{r} - (\omega_i + \omega_0)t] \\ &\quad + \frac{1}{2} \left. \frac{\partial \chi}{\partial \mathbf{Q}} \right|_0 \mathbf{Q}(\mathbf{q}, \omega_0) \mathbf{F}_i(\mathbf{k}_i, \omega_i) \cos[(\mathbf{k}_i - \mathbf{q}) \cdot \mathbf{r} - (\omega_i - \omega_0)t]. \quad (2.31) \end{aligned}$$

Puede observarse que \mathbf{P}_{ind} está formado por dos componentes: una componente *Stokes* con vector de onda $\mathbf{k}_S = (\mathbf{k}_i - \mathbf{q})$ y frecuencia $\omega_S = (\omega_i - \omega_0)$ y una componente *anti-Stokes* con vector de onda $\mathbf{k}_{AS} = (\mathbf{k}_i + \mathbf{q})$ y frecuencia $\omega_S = (\omega_i + \omega_0)$.

La intensidad de la radiación dispersada puede ser calculada del promedio temporal de la potencia emitida por la polarización inducida P_{ind} por unidad de ángulo sólido [1]. Esta intensidad depende de la polarización de la radiación dispersada e_d como $|P_{ind} \cdot e_d|^2$. Si e_i es la polarización de la radiación incidente, la intensidad I_d de la radiación dispersada será proporcional a:

$$I_d \propto \left| e_i \cdot \left(\frac{\partial \chi}{\partial \mathbf{Q}} \right)_0 \cdot e_d \right|^2. \quad (2.32)$$

Por lo tanto, I_d es proporcional a la variación de la polarizabilidad (o equivalentemente de ϵ) debido a la modulación producida por \mathbf{Q} . Lo mismo vale para cualquier otra modulación de ϵ . $\partial \chi / \partial \mathbf{Q}$ define las reglas de selección del proceso Raman. El desarrollo anterior es válido para fonones ópticos. Para fonones acústicos el efecto principal de modulación de χ es a través de la tensión η presente en el material [2]. Es decir,

$$\delta \chi = p(z) \eta(z) \quad (2.33)$$

donde $p(z)$ es la constante fotoelástica y $\eta(z)$ el campo de tensiones, que se definen según:

$$p(z) = \frac{\partial \chi}{\partial \eta} \quad (2.34)$$

$$\eta(z) = \frac{\partial u}{\partial z}, \quad (2.35)$$

donde $u(z)$ es el desplazamiento dentro de la estructura. Teniendo en cuenta las ec. 2.32, 2.34 y 2.35, y considerando la intensidad de la luz dispersada como la suma coherente de dispersores masivos, se deriva el modelo fotoelástico, en el que la sección eficaz Raman puede calcularse como [2, 55, 66]:

$$\sigma(\omega) \propto \frac{1}{\omega_{q_z}} \left[n(\omega_{q_z}) + \frac{1}{2} \pm \frac{1}{2} \right] \left| \int E_i(z) E_d^*(z) p(z) \frac{\partial u_w(z)}{\partial z} dz \right|^2, \quad (2.36)$$

donde $n(\omega_{q_z})$ es el factor estadístico de Bose-Einstein y E_i y E_d son los campos eléctricos incidente y dispersado respectivamente. El signo $+$ ($-$) corresponde a la componente Stokes (anti-Stokes).

En la descripción microscópica de la dispersión inelástica de luz por fonones en un semiconductor es necesario especificar el estado de los tres sistemas involucrados en el proceso: energía de los fotones incidente y dispersado, electrones en el semiconductor y el fonón que interviene en el proceso [1]. Cuando se utilizan fotones del rango visible para generar un proceso de dispersión Raman en un semiconductor, éstos se acoplan a los electrones a través del hamiltoniano de interacción electrón-radiación [1]:

$$\mathcal{H}_{eR} = \frac{e}{mc} A \cdot p. \quad (2.37)$$

En la Fig. 2.2 se muestra el proceso de dispersión Raman en un esquema de bandas. Un fotón incidente de energía $h\nu_i$ promueve un electrón de la banda de valencia a un nivel virtual de energía, en donde interactúa con la red emitiendo un fonón de energía $h\nu_f$, luego se combina con el hueco emitiendo un fotón de menor energía $h\nu_d$. Puede darse otra situación, en la que el electrón se promueva a un nivel virtual de energía, interactúe con la red absorbiendo un fonón de energía $h\nu_f$ y luego se recombine emitiendo un fotón de menor longitud de onda y por lo tanto mayor energía. Al primero de los procesos se lo denomina Stokes, y al segundo anti-Stokes [1, 67, 68]. Los electrones median el proceso de dispersión Raman por fonones, sin embargo permanecen inalterados después del proceso (ver esquema de la Fig. 2.2). Los procesos que involucran electrones son virtuales y no es necesario que se conserve la energía en los mismos. Sin embargo, deben cumplirse la conservación global de la energía y del momento.

En la Fig. 2.3 se muestran esquemáticamente los diagramas de Feynman que representan los procesos Raman descriptos. El caso en el que se emite (absorbe) un fonón se denomina dispersión Raman Stokes (anti-Stokes).

La sección eficaz del proceso Raman bajo la descripción microscópica y en cercanías de resonancias electrónicas puede escribirse como [69]:

$$\sigma(\omega_L) \propto \left| \sum_{i,j} \frac{\langle f | H_{MR} | i \rangle \langle i | H_{e-ph} | j \rangle \langle j | H_{MR} | 0 \rangle}{(\omega_L - \omega_i - i\gamma_i)(\omega_L - \omega_j - i\gamma_j)} \right|^2. \quad (2.38)$$

Donde $|0\rangle$ ($|f\rangle$) es el estado inicial (final) del sistema y $|i\rangle$ ($|j\rangle$) son los estados intermedios con energías y vidas medias dadas por ω_i (ω_j) y γ_i (γ_j) respectivamente. Los dos denominadores de energía que aparecen en la ec. 2.38 dan cuenta de las resonancias electrónicas: *ingoing resonance* cuando $\omega = \omega_i$ y *outgoing resonance* cuando $\omega = \omega_j$. Estas

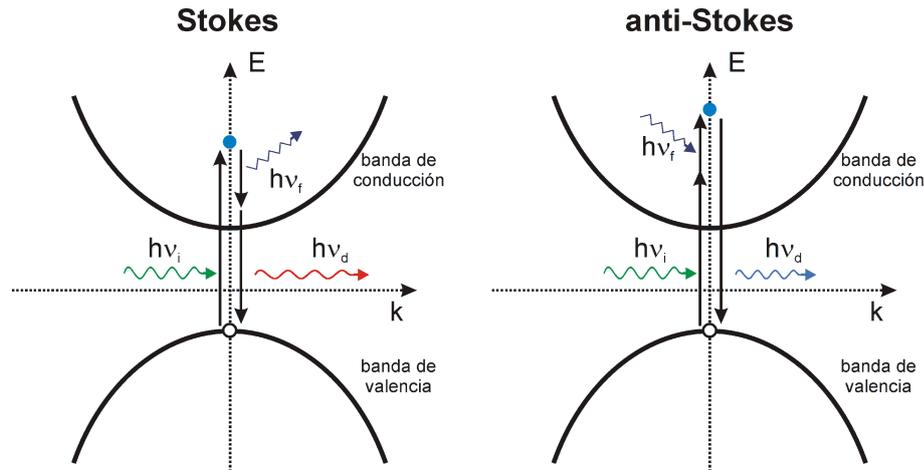


Figura 2.2: Dispersión Raman en un semiconductor. Un fotón incidente de energía $h\nu$ crea un par electrón-hueco. El electrón es promovido a un nivel virtual en donde emite (absorbe) un fonón, luego se recombina con el hueco emitiendo un fotón de menor (mayor) energía. Si el fonón es emitido (absorbido) el proceso se denomina Stokes (anti-Stokes).

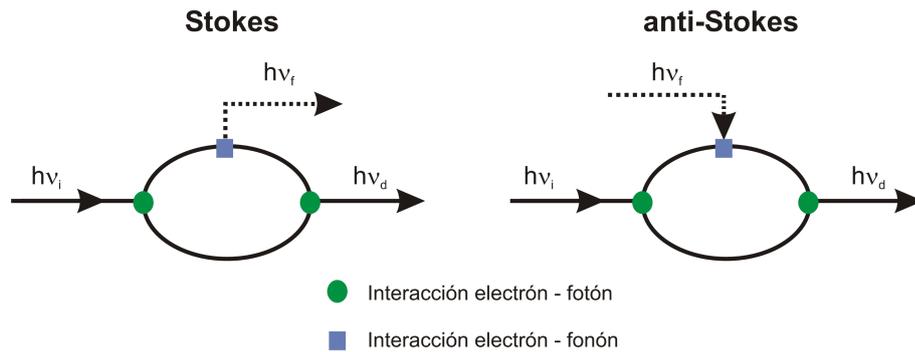


Figura 2.3: Diagramas de Feynman de los procesos Raman Stokes (izquierda) y anti-Stokes (derecha). Un fotón incidente de energía $h\nu$ genera un par electrón-hueco, este par absorbe o emite un fonón en el material y finalmente se recombina emitiendo un fotón de energía diferente a la incidente.

resonancias pueden amplificar la intensidad del proceso Raman, y se dan cuando la energía del fotón incidente o dispersado coincide con alguna transición electrónica del material.

Otro tipo de resonancia es la asociada al campo eléctrico de la luz en el hamiltoniano \mathcal{H}_{eR} , denominada resonancia óptica [24, 34, 35], y consiste en hacer resonar los términos del numerador asociados a los estados fotónicos incidentes y/o dispersados. Esto puede lograrse confinando y amplificando el campo eléctrico en cavidades ópticas que encierran al sistema estudiado (ver Cap. 5). La resonancia óptica puede combinarse con la resonancia electrónica logrando amplificaciones debidas al confinamiento óptico y a la sintonía con las transiciones electrónicas [26, 70].

En el proceso de dispersión Raman en un medio homogéneo tanto el vector de onda como la frecuencia son magnitudes que se conservan. Como resultado de la conservación

del momento, el mayor vector de onda q de los fonones estudiados resulta menor que dos veces el vector de onda del fotón incidente. Por ejemplo, utilizando láseres en el rango visible como fuentes de excitación en una muestra con un índice de refracción ~ 3 , q es del orden de 10^6 cm^{-1} . Este valor es aproximadamente $1/100$ del tamaño de la primera zona de Brillouin en un semiconductor. Por lo tanto sólo se accede, en un proceso de primer orden como el descrito, a excitaciones de centro de zona.

2.3.1. Método experimental

Las mediciones de fotoluminiscencia y dispersión Raman realizadas durante el presente trabajo fueron obtenidas utilizando un arreglo experimental como el esquematizado en la Fig. 2.4. Como fuentes de excitación se utilizaron dos láseres, uno de Ar-Kr y uno de titanio-zafiro. El láser de Ar-Kr permite trabajar con 17 longitudes de onda que van desde 457 nm a 676 nm. El láser de titanio-zafiro permite variar su longitud de onda entre 750 nm y ~ 1000 nm en forma continua. Es bombeado por un láser de estado sólido Millenia de Spectra Physics que trabaja con una longitud de onda de 532 nm y con una potencia máxima de 5 W. Las muestras se montan en un crióstato que permite trabajar con temperaturas entre 77 K y temperatura ambiente, y cuenta con ventanas ópticas amplias de manera que es posible incidir con ángulos de hasta 50° .

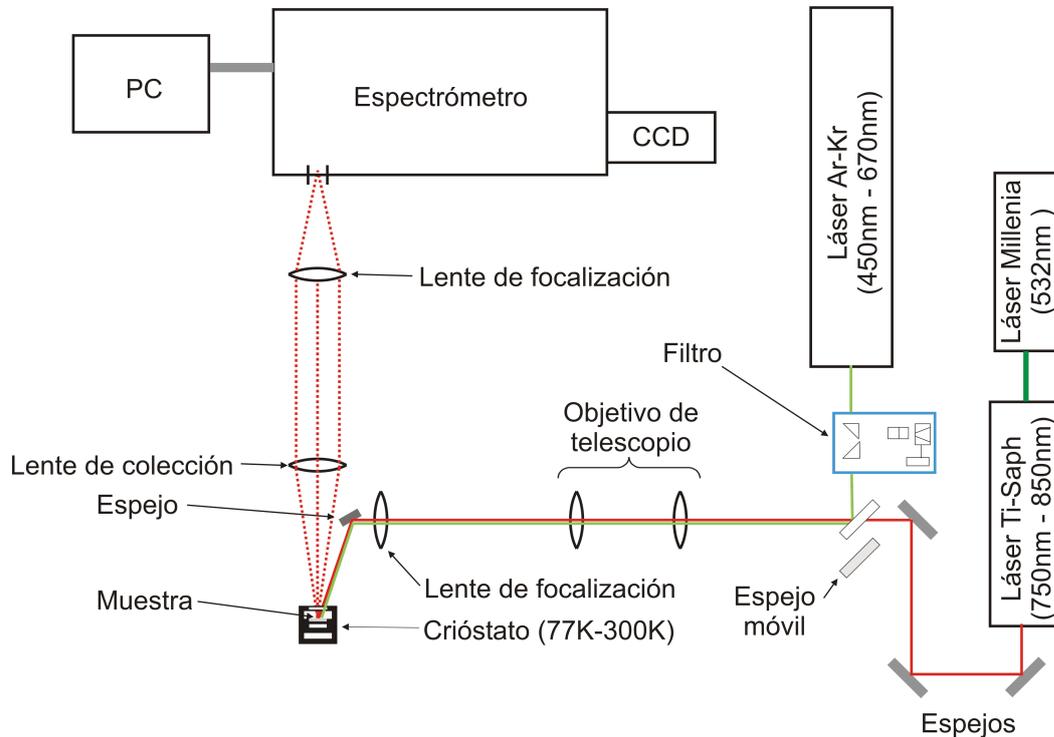


Figura 2.4: Esquema del dispositivo experimental formado por el espectrómetro triple Jobin-Yvon T64000, los láseres de Ar-Kr, Ti-Saph y Millenia, crióstato y lentes ópticas y espejos.

El haz del láser se lleva hasta la muestra utilizando una serie de espejos dieléctricos. Este haz atraviesa un objetivo de telescopio cuya función es ensancharlo para lograr *spots*

de focalización de hasta $20 \mu\text{m}$ de diámetro. Continuando el camino óptico, se encuentra una lente de focalización y un último espejo que permite variar el ángulo de incidencia: su función es focalizar la luz sobre la muestra que se encuentra en el crióstato. La luz dispersada por la muestra es colectada por una lente de 10 cm de distancia focal, y finalmente focalizada en la entrada del espectrómetro por una lente de 40 cm de distancia focal.

La etapa de detección es la más delicada en los experimentos de dispersión Raman. Debido a la baja intensidad de la señal Raman, y a la proximidad del láser, uno de los mayores obstáculos es la eliminación de la luz espuria o *stray-light*. Para la detección se utilizó un espectrómetro Jobin-Yvon T64000, consistente en tres monocromadores en serie. Este espectrómetro permite trabajar en dos modos, uno de baja resolución o sustractivo, y uno de alta resolución o aditivo. En la Fig. 2.5 se muestra un esquema interno del espectrómetro JY-T64000. Se pueden distinguir los tres monocromadores que conforman el equipo, el módulo de adaptación para el modo aditivo y los dos medios de detección: una CCD (charge coupled device) y un fotomultiplicador (PMT). Cada monocromador consiste en dos espejos parabólicos y una red de difracción de 1800 gr/mm.

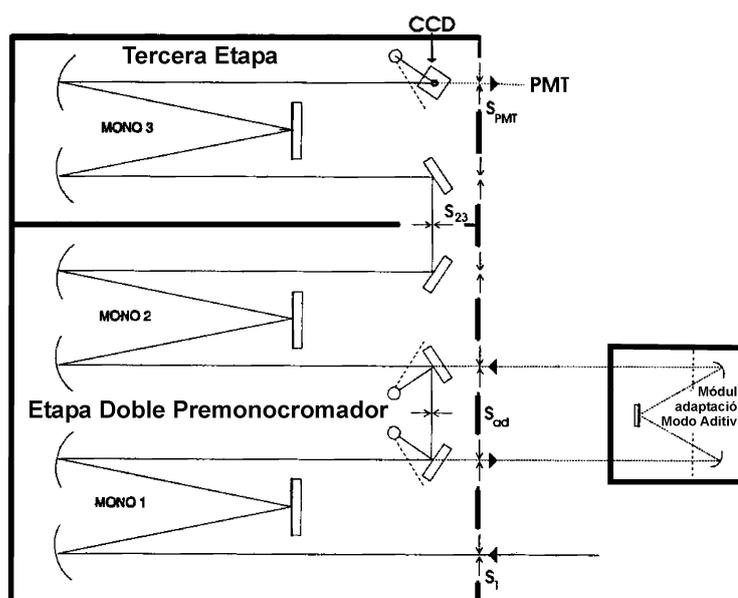


Figura 2.5: Esquema interno del espectrómetro JY-T64000. Tres monocromadores en tandem, con dos configuraciones posibles de operación, sustractivo (menor resolución) y aditivo (mayor resolución) mediante el módulo de adaptación.

La forma de acoplamiento entre los dos primeros monocromadores determina el modo de funcionamiento del equipo. En la configuración del modo sustractivo, la luz ingresa por la rendija S_1 , y el primer monocromador separa las longitudes de onda. Este se acopla al segundo monocromador a través de dos espejos, entre los cuales se filtra el haz con una rendija (S_{12}); la luz no pasa por el módulo de adaptación del modo aditivo. Al reflejarse en los espejos, las longitudes de onda quedan ubicadas de forma tal que la segunda red de difracción recombina los colores, formando una imagen sobre la rendija S_{23} . El segundo monocromador se acopla al tercero a través de dos espejos que dejan los colores espa-

cialmente ubicados de modo que la tercer red de difracción los separa nuevamente. La separación de colores, y por lo tanto la resolución de este modo está dada por la tercer etapa. La señal finalmente se toma con una CCD o con el PMT. En esta configuración, los primeros dos monocromadores actúan como filtros para excluir el láser y minimizar las contribuciones de *stray-light*.

En la configuración del modo aditivo la luz ingresa igualmente por la rendija S_1 , y los colores son separados por el primer monocromador. Sin embargo, a diferencia del modo sustractivo, el acoplamiento entre las dos primeras etapas se realiza a través de dos espejos parabólicos y un espejo plano que constituyen el módulo de adaptación del modo aditivo. Los colores quedan espacialmente ubicados de manera que la segunda red de difracción nuevamente separa los colores, que ingresan al tercer monocromador pasando por la rendija S_{23} . El tercer monocromador una vez más actúa separando los colores, por lo que la resolución está dada por los tres monocromadores en serie, que realizan tres aperturas sucesivas del espectro incidente. Cabe señalar que al no pasar la luz por S_{12} , el filtrado se hace con las rendijas S_{ad} y S_{23} . Estas permiten realizar un filtrado mecánico de la señal, acotando la ventana de medición.

Si bien el modo aditivo permite alcanzar mayores resoluciones, la relación señal/ruido es $1/3$ de la alcanzada en el modo sustractivo, y la ventana de medición es mucho menor. En los Cap. 4 y 5 se hará uso de ambos modos para el estudio de estructuras no-periódicas optimizadas como filtros para fonones acústicos y de estructuras formadas por cavidades acústicas y ópticas.

Un experimento de dispersión Raman consiste básicamente en la excitación de una muestra con un láser y en el análisis espectroscópico de la luz dispersada. En este trabajo analizamos dos geometrías para la realización de experimentos de dispersión Raman: *backscattering* (BS) y *forward scattering* (FS). En la Fig. 2.6 se muestra un esquema del experimento en las dos geometrías de medición y un esquema del dispositivo experimental. Como puede observarse, en el caso BS, la incidencia con el láser, y la colección de la luz dispersada se realizan del mismo lado de la muestra, en el caso FS la incidencia se realiza de un lado, y la colección de la luz del otro.

Para la geometría BS $k_i \simeq -k_d$ y para la geometría FS $k_i \simeq k_d$. De esta manera la transferencia de momento es máxima (mínima) en BS (FS). Teniendo en cuenta la conservación del vector de onda:

$$q \simeq 2k_i \quad (2.39)$$

$$q \simeq 0 \quad (2.40)$$

para las geometrías BS y FS respectivamente.

2.3.2. Simulación numérica del modelo fotoelástico

La dispersión de luz por fonones acústicos longitudinales puede ser tratada como una suma coherente de dispersores masivos debido al mecanismo fotoelástico. La sección eficaz Raman está dada por la ec. 2.36 [2].

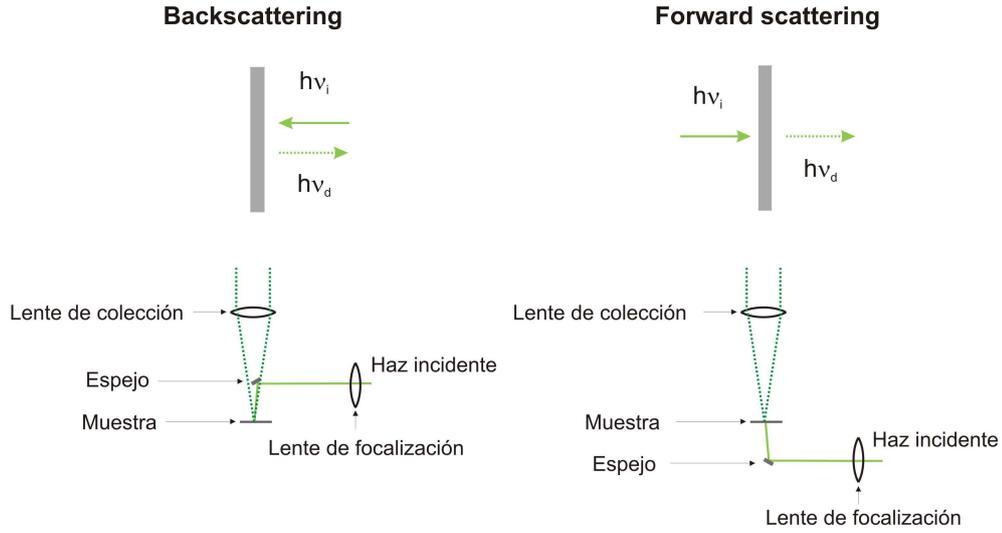


Figura 2.6: Esquema del experimento de dispersión Raman y dispositivo experimental para las geometrías de *backscattering* (izquierda) y *forward scattering* (derecha).

El coeficiente fotoelástico p es característico de cada material y por lo tanto dependiente de la coordenada espacial z . En la región visible del espectro electromagnético, y para los materiales utilizados es un número complejo. En cambio, para la región del infrarrojo donde los materiales son transparentes, es un número real. En todos los casos se considerará un perfil constante en cada capa, despreciando los efectos de confinamiento en la distribución espacial de la función de onda electrónica, y posibles efectos de interdifusión de los materiales [71].

Existen dos casos en donde el campo eléctrico toma expresiones simples: el de ondas electromagnéticas propagantes (materiales bulk, o superredes infinitas), y el caso de ondas electromagnéticas confinadas en una microcavidad [23, 72]. En general para el cálculo de los términos de campo eléctrico se considerarán ondas planas:

$$E_{i,d} \propto e^{ik_{i,d}z} \quad (2.41)$$

donde k_i ó k_d son vectores de onda de la luz en un medio efectivo formado por los materiales de la multicapa. Esta aproximación será válida siempre y cuando la longitud de onda de la luz sea mucho mayor que el período de la estructura que se está estudiando. Teniendo en cuenta la ec. 2.41, la sección eficaz Raman (ec. 2.36) puede escribirse como:

$$\sigma(\omega) \propto \left| \int e^{2ikz} p(z) \frac{\partial u_w(z)}{\partial z} dz \right|^2, \quad (2.42)$$

para la geometría BS ($k_i = -k_d$), y como

$$\sigma(\omega) \propto \left| \int p(z) \frac{\partial u_w(z)}{\partial z} dz \right|^2, \quad (2.43)$$

para la geometría FS ($k_i = k_d$).

Si se tiene en cuenta la absorción, ésta aparecerá en el vector de onda a través del índice de refracción complejo. Para el caso de la geometría BS se tiene (teniendo en cuenta

absorción):

$$E_i E_d^* \propto e^{2ik_i z} e^{-2\alpha z} \quad (2.44)$$

considerando que $|k_d| \approx |k_i|$.

En cambio, para la geometría FS se obtiene:

$$E_i E_d^* \propto e^{-\alpha D}. \quad (2.45)$$

En ambos casos, α es el coeficiente de absorción del medio efectivo considerado, y D es el ancho total de la muestra.

Los desplazamientos $u(z)$ se determinan resolviendo la ecuación de ondas 1.1 con un conjunto de condiciones de contorno apropiadas. En la Sec. 2.1 se trabajó con condiciones de contorno adecuadas para calcular la reflectividad de una estructura. Sin embargo estas no son correctas para representar el campo de desplazamiento en sistemas en donde una de las superficies de la muestra se encuentra en contacto con el aire. En este caso, las condiciones de contorno usuales son las de superficie libre, o tensión cero en la interfaz aire-muestra. Tomando las soluciones generales en la capa que se encuentra en contacto con el aire:

$$u(\omega, z) = A e^{ik_1 z} + B e^{-ik_1 z}, \quad (2.46)$$

y aplicando la condición de contorno de tensión cero en la superficie ($z = 0$) se obtiene,

$$\left. \frac{\partial u(\omega, z)}{\partial z} \right|_{z=0} = 0 = A i k_1 - B i k_1 \Rightarrow A = B. \quad (2.47)$$

Tomando esta condición sobre interfaz aire-muestra, el sistema de ecuaciones a resolver queda determinado por:

$$\begin{pmatrix} a \\ a \end{pmatrix} = A_{est}(\omega) \begin{pmatrix} t(\omega) \\ r(\omega) \end{pmatrix}. \quad (2.48)$$

donde r y t son los coeficientes correspondientes a la última capa y a el de la primera capa. La condición de normalización permitirá establecer el valor del coeficiente a . Si se considera un sustrato infinito, la condición de normalización estará dada por

$$|u_{subst}| = 1. \quad (2.49)$$

La elección de condiciones de contorno adicionales sobre la última interfaz del sistema produce una cuantización de los vectores de onda permitidos. En particular imponiendo condiciones de tensión nula al final de sustrato se obtiene la siguiente condición de cuantización:

$$\begin{pmatrix} a \\ a \end{pmatrix} = A_{est}(\omega) \begin{pmatrix} b \\ b \end{pmatrix}, \quad (2.50)$$

que es equivalente a:

$$A_{11} + A_{12} = A_{21} + A_{22}, \quad (2.51)$$

donde A_{ij} representa el elemento ij de la matriz A_{est} .

Cuanto más grande sea el espesor del sustrato, mayor será el número de vectores de onda permitidos. La condición de normalización en muestras de tamaño finito estará dada por la siguiente expresión:

$$\int_{-\infty}^{\infty} \rho(z)|u(z)|^2 dz = 1 \quad (2.52)$$

Salvo indicaciones contrarias, no se fijarán condiciones de contorno sobre la última capa del sistema para el cálculo de eficiencia Raman.

2.3.3. Dispersión Raman en superredes

En la Fig. 2.7 se muestra el espectro Raman de una superred de GaAs/AlAs medido por Jusserand *et al.* [73] en geometría BS. Esta geometría corresponde a coleccionar la luz dispersada por el sistema en la misma dirección de incidencia y con sentido contrario (ver Fig. 2.6). El impulso transferido al fonón es aproximadamente dos veces el impulso del fotón incidente. En consecuencia, la serie de tres dobletes equiespaciados corresponde a las excitaciones con $q = 2k_i$, que en el caso de una superred son los dobletes debidos al repliegamiento de la relación de dispersión *bulk*.

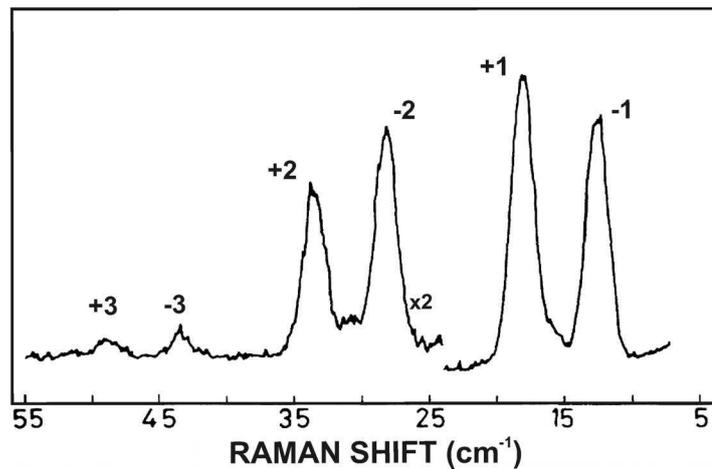


Figura 2.7: Espectro Raman típico en geometría BS en donde se pueden observar los dobletes correspondientes a una superred de GaAs/AlAs con un período de 11.5 nm [73].

Los dobletes del espectro BS disminuyen su intensidad a medida que aumentan su energía. Esto se debe principalmente a que a mayor energía la población térmica de fonones es menor, y al mismo tiempo, la probabilidad de decaimiento por anarmonicidad es mayor. Además, picos que componen cada doblete no tienen la misma intensidad debido a reglas de simetría. En esta geometría, es posible variar ligeramente la región de la relación de dispersión sondeada variando la longitud de onda del láser utilizado.

Para determinadas combinaciones de espesores y longitudes de onda del láser, las excitaciones en BS pueden corresponder al borde la minizona de Brillouin definida por el período de la superred. En los semiconductores masivos, en cambio, sólo es posible acceder a regiones en donde $2k_i$ representa una fracción mínima de la primera zona de Brillouin.

En la Fig. 2.8 se presentan espectros de una superred de a-Si/a-SiN_x, medidos por Santos *et al.* [74] en geometrías BS (arriba) y FS (abajo). En el espectro BS se pueden observar los dos picos correspondientes al primer doblete. En cambio, en el espectro FS se observa un solo modo de energía intermedia entre los dos picos BS. Los modos de centro de zona tienen simetrías definidas [2]. El pico que se observa en el espectro corresponde al modo A_1 , Raman activo. El modo B_2 es Raman inactivo por paridad. Fuera de centro de zona, estas reglas de selección se relajan, y ambos picos son observables (caso BS). Debe notarse sin embargo, que en geometría BS, el pico correspondiente al modo permitido será más intenso que el correspondiente al modo prohibido (ver Fig. 2.7). Existen numerosas referencias en las que tanto las energías como las relaciones de intensidades (fuera de las condiciones de resonancia electrónica) por el modelo fotoelástico están en excelente acuerdo con los resultados experimentales [2].

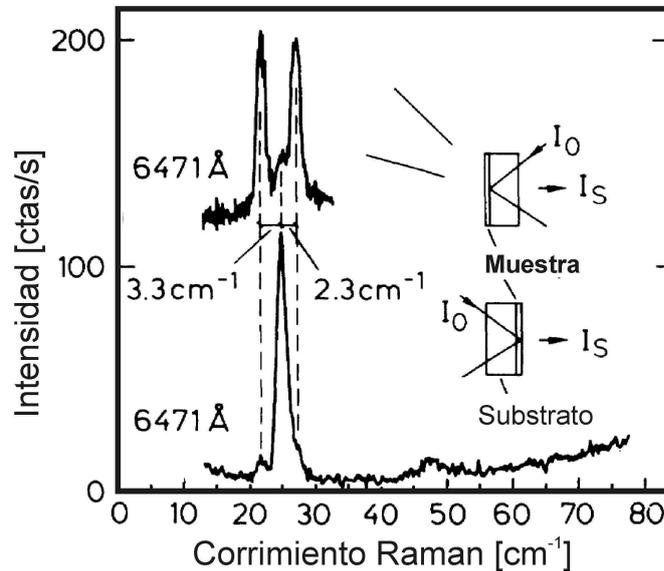


Figura 2.8: Comparación entre espectros Raman obtenidos en geometrías BS (arriba) y FS (abajo) alrededor del doblete de menor energía para una superred de a-Si/a-SiN_x. En cada caso se indica la configuración de medición: I_0 e I_s indican el haz incidente y la luz dispersada respectivamente [74].

2.4. Generación y detección de fonones acústicos coherentes

En esta sección se aborda el problema de la generación y estudio de vibraciones acústicas en el dominio temporal. Existen diversas estrategias para generar fonones acústicos coherentes utilizando pulsos de luz. En materiales masivos, las frecuencias alcanzables están en el rango 1MHz-100 GHz. Un ejemplo es la dispersión Brillouin estimulada, en donde dos pulsos de luz de vectores de onda k_{i1} y k_{i2} se superponen espacial y temporalmente dentro de una muestra para excitar fonones acústicos de vector de onda $q = \pm(k_{i1} - k_{i2})$; cumpliéndose en materiales transparentes la condición de *phase matching* [75].

Otro enfoque diferente es el propuesto por Thomsen et al. [14, 76] que consiste en la

generación coherente de fonones acústicos mediante la utilización de un láser ultra-rápido en sustancias absorbentes. Existen tres mecanismos principales por los cuales la luz se puede acoplar al sonido: 1) fototérmico, 2) potencial de deformación, y 3) fotoelástico o electrostricción.

Cuando un pulso láser incide sobre un material absorbente, los electrones son excitados y, en el caso particular de los semiconductores, serán promovidos de la banda de valencia a la banda de conducción. La relajación intrabanda por emisión de fonones tanto de los electrones como de los huecos se verá traducida en un aumento rápido de temperatura de la red cristalina. Debido a efectos de anarmonicidad, el incremento en el número de fonones induce un cambio de volumen y este a su vez, induce una tensión en el material.

Del mismo modo, el estado de equilibrio de la red con portadores fotoexcitados no es igual al estado fundamental. Por lo tanto, con posterioridad a la fotoexcitación y mientras no se produzca la recombinación, la red debe reacomodarse a la nueva situación de equilibrio, comenzando por lo tanto a oscilar. Este es el denominado potencial de deformación. En un metal, este mecanismo es importante durante el primer picosegundo hasta que se alcanza la termalización electrón-fonón. En cambio, en semiconductores los portadores permanecerán fuera de sus posiciones de equilibrio por más tiempo debido a la existencia de los gaps electrónicos, extendiendo los tiempos característicos en que el potencial de deformación es relevante para la generación coherente de fonones.

El mecanismo fotoelástico o de electrostricción no requiere de un medio absorbente. En este caso, el pulso láser induce una polarización en el material. Esta polarización provoca una compresión en la dirección del campo eléctrico, generando una tensión mecánica, a través del mismo mecanismo que da lugar a la dispersión Raman (ec. 2.33). La deformación resultante es proporcional al cuadrado del módulo del campo eléctrico incidente. En materiales transparentes será el principal mecanismo de generación.

Entre las numerosas estrategias de generación de fonones acústicos coherentes de ultra-alta frecuencia se pueden mencionar la utilización de pozos y puntos cuánticos [77, 78], superredes [79], y materiales piezoeléctricos [80], entre otras. En el caso de las superredes, el vector de onda de los modos acústicos no sólo se define por las propiedades ópticas del material y el vector de onda del pulso electromagnético, sino también por el período de la estructura. Es importante notar que el espectro de fonones generado responde a las mismas reglas de selección independientemente del mecanismo que se considere.

De manera análoga al proceso de generación, es posible concebir un sistema de detección basado en el mecanismo fotoelástico [14, 76, 81]. El experimento clásico de generación y detección de fonones acústicos coherentes consiste en incidir sobre una muestra con un pulso ultracorto de luz (en adelante pump). Este pulso interactúa con la muestra, y se genera una distribución de tensiones que evoluciona en el tiempo causando una modulación de las propiedades ópticas de la muestra. Esta modulación provoca un cambio de la reflectividad en el tiempo, que es sondeado por un segundo pulso láser (en adelante probe) de menor intensidad. A continuación se describirán los modelos físicos, y los dispositivos experimentales utilizados en el presente trabajo.

2.4.1. Modelo fotoelástico de generación y detección

En esta sección se presentarán los modelos que explican los procesos de generación y detección de fonones coherentes basados en el mecanismo fotoelástico. Asimismo se analizará cual es el efecto de la absorción de la luz en las características de generación y detección de un sistema.

Generación fotoelástica de fonones acústicos coherentes

A continuación se presenta el modelo de generación de fonones coherentes basado en el trabajo de Merlin [81]. Luego se estudiará el efecto de la absorción de la luz sobre el espectro generado.

Teniendo en cuenta sólo el mecanismo fotoelástico, y despreciando efectos termoelásticos, la propagación de fonones acústicos longitudinales en presencia de un pulso electromagnético está regida por la siguiente ecuación de movimiento:

$$\rho(z) \frac{\partial^2 u(z, t)}{\partial t^2} = \frac{\partial}{\partial z} \left(C_{44}(z) \frac{\partial u(z, t)}{\partial z} - \frac{p_{12}(z) |F_0(z, t)|^2}{4\pi} \right), \quad (2.53)$$

donde ρ , C_{44} , p_{12} y F_0 son la densidad, la constante de fuerza, la constante fotoelástica y el campo eléctrico del pulso *pump* respectivamente. El último término es equivalente al término de generación en la ecuación de un oscilador forzado.

Si $u_q(z)$ son las soluciones de la ec. 2.53 con $F_0 = 0$ (ver Sec.1.2.2), entonces las soluciones generales toman la siguiente forma:

$$u(z, t) = \sum_q r_q u_q(z) e^{i\Omega_q t}, \quad (2.54)$$

donde Ω_q son las frecuencias dependientes del vector de onda q , y los coeficientes r_q se determinan con el conjunto de condiciones iniciales del problema. Si además se impone que $u(z, 0) = 0$ entonces las soluciones se reducen al conjunto:

$$u(z, t) = \sum_q r_q u_q(z) \text{sen}(\Omega_q t). \quad (2.55)$$

Cabe destacar que las condiciones de contorno adecuadas para la interfaz aire-muestra en este problema son las que corresponden a una superficie libre (tensión cero en la superficie).

Integrando en el tiempo la Ec. 2.53 de $t = -\infty$ a $t = 0$, e imponiendo $u(z, t) = 0$ para $t \leq 0$, se obtiene la condición inicial:

$$\rho(z) \frac{\partial u(z, t)}{\partial t} \Big|_{t=0} = \frac{\partial}{\partial z} \left[-\frac{p(z)}{4\pi} \int_{-\infty}^0 |F_0(z, t)|^2 dt \right]. \quad (2.56)$$

Teniendo en cuenta que:

$$\int \rho(z) u_p(z) u_q(z) dz = \delta_{pq}, \quad (2.57)$$

tomando las soluciones 2.55 y reemplazando en 2.56 se obtiene:

$$-4\pi r_q \Omega_q = \int_0^l u_q(z) \frac{\partial}{\partial z} \left[p(z) \int_{-\infty}^0 |F_0(z, t)|^2 dt \right] dz, \quad (2.58)$$

donde l es el espesor de la muestra considerada. Esta expresión permite obtener los coeficientes r_q dada una cierta impulsión $F_0(z, t)$ en función de magnitudes conocidas.

A continuación se considerará el caso en que el pulso es deltiforme en el tiempo:

$$F_0(z, t) = F_0 e^{ik_i z} \delta(t) \quad (2.59)$$

donde k_i es el vector de onda de la luz dentro de la muestra. Esta es una suposición razonable para oscilaciones de ~ 100 GHz-10 THz cuando los láseres son del rango ps-fs.

En este caso,

$$\int_{-\infty}^0 \delta(t) |F_0(z, t)|^2 dt = F_0^2. \quad (2.60)$$

De esta manera, los coeficientes r_q se pueden expresar como:

$$r_q = -\frac{F_0^2}{4\pi\Omega_q} \int_0^l \frac{\partial p(z)}{\partial z} u_q(z) dz. \quad (2.61)$$

Integrando 2.61 por partes se obtiene

$$r_q = \frac{F_0^2}{4\pi\Omega_q} \int_0^l p(z) \frac{\partial u_q(z)}{\partial z} dz. \quad (2.62)$$

Ver que esta expresión es muy similar a la sección eficaz Raman en geometría FS descrita en la ec. 2.43 [81], es decir, el módulo cuadrado del espectro generado es proporcional al espectro Raman FS. Asimismo, esto implica que se generan solo excitaciones con $q = 0$.

Si se analiza un caso más general en donde se considera un medio absorbente, el campo eléctrico toma la forma:

$$F_0(z, t) = F_0 e^{ik_i z} e^{-\alpha z} \delta(t), \quad (2.63)$$

la ec. 2.60 se convierte en

$$\int_{-\infty}^0 \delta(t) |F_0(z, t)|^2 dt = F_0^2 e^{-2\alpha z}, \quad (2.64)$$

y los coeficientes r_q se calculan según:

$$r_q = \frac{F_0^2}{4\pi\Omega_q} \int_0^l p(z) \frac{\partial u_q(z)}{\partial z} e^{-2\alpha z} dz. \quad (2.65)$$

A los efectos de simular experimentos pump-probe en unidades arbitrarias, será útil de aquí en más considerar los coeficientes r_q a menos de un factor constante:

$$r_q \propto \frac{1}{\Omega_q} \int_0^l p(z) \frac{\partial u_q(z)}{\partial z} e^{-2\alpha z} dz. \quad (2.66)$$

En este caso aparece en el integrando un término de la forma $e^{-2\alpha z}$. Al tener en cuenta la absorción, el espectro generado deja de ser idéntico al espectro Raman FS. En la generación de fonones coherentes, el término de absorción dentro de la integral es el que permite en medios muy absorbentes la generación de un espectro no limitado a $q = 0$, sino prácticamente blanco [82]. Es importante notar la diferencia con la integral de eficiencia Raman FS, en donde la absorción aparece como un término constante de la forma $e^{-\alpha d}$ (ver ec. 2.43 y 2.45).

A continuación se analizará la generación en un medio periódico infinito, el espectro de generación estará dado por:

$$r_q = \frac{F_0^2}{4\pi\Omega_q} \int_0^\infty p(z) \frac{\partial u_q(z)}{\partial z} dz. \quad (2.67)$$

Se calculan los desarrollos de Fourier de $p(z)$ y $\partial u_q(z)/\partial z$:

$$p(z) = \sum_m p_m e^{igmz} \quad (2.68)$$

$$u_q(z) = e^{iqz} \sum_n u_{q,n} e^{ignz} = \sum_n u_{q,n} e^{iz(ng+q)} \quad (2.69)$$

$$\frac{\partial u_q(z)}{\partial z} = \sum_n u_{q,n} i(ng+q) e^{iz(ng+q)}. \quad (2.70)$$

Reemplazando en 2.67 se obtiene

$$r_q \propto \int_0^\infty \sum_{m,n} p_m u_{q,n} i(ng+q) e^{igmz} e^{i(ng+q)z} dz. \quad (2.71)$$

Los términos r_q no nulos son los que cumplen con la condición:

$$ng + q + gm = 0 \Rightarrow q = -g(m+n) \quad (2.72)$$

Es decir, los fonones generados tienen un vector de onda que pertenecen al centro de zona de Brillouin, y dado por números enteros del vector de red recíproca de la estructura periódica g .

Si en la ec. 2.67 se incluye el término de absorción el espectro generado está determinado por:

$$r_q = \frac{F_0^2}{4\pi\Omega_q} \int_0^l p(z) \frac{\partial u_q(z)}{\partial z} e^{-2\alpha z} dz. \quad (2.73)$$

El desarrollo de Fourier del término de absorción está dado por:

$$e^{-2\alpha z} \propto \int_{-\infty}^{+\infty} \alpha(r) e^{irz} dr, \quad (2.74)$$

donde r es una variable real continua. Reemplazando 2.68, 2.70 y 2.74 en 2.73, se obtiene:

$$r_q \propto \int_0^\infty \left[\sum_{m,n} p_m u_{q,n} i(nq + q) e^{igmz} e^{i(nq+q)z} \left(\int_{-\infty}^{+\infty} \alpha(r) e^{irz} dr \right) \right] dz \quad (2.75)$$

$$\propto \int_0^\infty \int_{-\infty}^{+\infty} \sum_{m,n} p_m u_{q,n} i(nq + q) \alpha(r) e^{igmz} e^{i(nq+q)z} e^{irz} dr dz, \quad (2.76)$$

de donde se deduce la regla de selección para el caso de un medio absorbente:

$$q = r - g(m + n). \quad (2.77)$$

Se puede ver entonces que la regla de selección 2.72 se relaja, y con absorción se vuelven accesibles vectores de onda que no se encuentran en el centro de zona. En el caso de una generación en un medio donde $\alpha \rightarrow \infty$, la transformada de Fourier del término de absorción $\alpha(r)$ tiende a un valor constante, que se traduce en una distribución extendida de vectores de onda q permitidos. Para el caso en que α toma un valor finito, $\alpha(r)$ tiene una distribución de ancho 4α .

Por ejemplo, considérese una superred de GaAs/AlAs en un experimento de generación de fonones por láseres ultra-rápidos. En el caso de un láser para el cual la muestra es transparente, el espectro generado puede asociarse al espectro Raman FS. Sin embargo, cambiando el láser a colores en los cuales la muestra se vuelve más y más absorbente, la generación se producirá en una región más acotada de la muestra, y la distribución de vectores de onda q de los fonones generados aumentará. En el caso límite en el que la generación se produce en un punto del espacio $\delta(z_0)$ el espectro generado se vuelve blanco: se necesitan fonones con una distribución en k infinita para describir esa condición inicial.

Detección fotoelástica de fonones acústicos coherentes

Hasta aquí se ha analizado como se generan fonones acústicos coherentes. A continuación se analizará como se detectan. Para ello, en este apartado se deducirán las expresiones que rigen el cambio en el coeficiente de reflexión debido a la presencia de una onda de tensiones cerca de la superficie. Esta tensión modula la función dieléctrica y genera una perturbación dependiente del tiempo y de la posición. Es esta modulación de la constante dieléctrica la responsable del cambio en la reflectividad óptica.

Siguiendo el análisis propuesto por Thomsen *et al.* [76] a continuación se derivarán las expresiones que rigen la variación de la reflectividad con el tiempo, en función de las tensiones presentes en una muestra consistente en una película depositada sobre un sustrato. En la Fig. 2.9 se muestra un diagrama esquemático del experimento a modelar.

En el experimento propuesto se utiliza un pulso probe retardado y de intensidad mucho menor que la del *pump* para medir la reflectividad de la muestra. Esta reflectividad sufre un cambio ΔR cuando existen tensiones cerca de la superficie. El cambio ocurre debido a que las constantes ópticas de la muestra cambian por los fonones presentes (debido al mismo mecanismo fotoelástico que lleva a la dispersión Raman descrita en la Sec. 2.3).

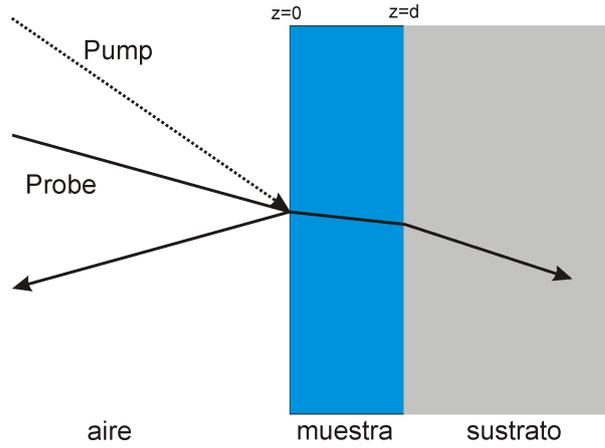


Figura 2.9: Diagrama esquemático del experimento *pump-probe* sobre una película delgada.

Entonces se tiene:

$$\Delta n(z, t) = \frac{\partial n(z)}{\partial \eta} \eta(z, t) \quad (2.78)$$

$$\Delta \kappa(z, t) = \frac{\partial \kappa(z)}{\partial \eta} \eta(z, t), \quad (2.79)$$

donde $\Delta n(z, t)$ y $\Delta \kappa(z, t)$ son los cambios de las partes real e imaginaria del índice de refracción complejo respectivamente, y $\eta(z)$ es la distribución de tensiones en la muestra. $n(z)$ y $\kappa(z)$ son los valores en ausencia de tensiones. La parte imaginaria κ está relacionada con el coeficiente de absorción según:

$$\alpha = 2\omega\kappa/c. \quad (2.80)$$

Se considera el caso en el que η_{33} es la única componente del tensor de deformaciones distinta de cero, es decir $\eta = \eta_{33}$.

Cuando no existen deformaciones en el material, una onda electromagnética incidiendo en forma normal a la superficie con campo eléctrico:

$$F_x^{(i)} = F_0 e^{i(k_0 z - \omega t)} \quad (2.81)$$

generará una onda transmitida y una onda reflejada descritas por:

$$F_x^{(t)} = t_0 F_0 e^{i(kz - \omega t)} \quad (2.82)$$

$$F_x^{(r)} = r_0 F_0 e^{i(-k_0 z - \omega t)} \quad (2.83)$$

donde los coeficientes de transmisión y reflexión para la estructura de la Fig. 2.9 son:

$$t_0 = \frac{2k_0}{k_0 + k} = \frac{2}{1 + n + i\kappa}, \text{ y} \quad (2.84)$$

$$r_0 = \frac{k_0 - k}{k_0 + k} = \frac{1 - n - i\kappa}{1 + n + i\kappa}, \quad (2.85)$$

y k_0 y k son los vectores de onda en el vacío y en la muestra respectivamente. Para calcular el cambio de reflectividad debido a deformaciones es necesario resolver las ecuaciones de

Maxwell dentro de la muestra cuando las propiedades ópticas varían con la posición. Se tiene entonces:

$$\frac{\partial^2 F_x}{\partial z^2} = -\frac{\omega^2}{c^2} [\epsilon + \Delta\epsilon(z, t)] F_x(z) \quad (2.86)$$

donde ϵ es la constante dieléctrica del material en ausencia de tensiones, y está relacionada con n y κ a través de:

$$\epsilon = (n + i\kappa)^2. \quad (2.87)$$

$\Delta\epsilon(z, t)$ es el cambio en ϵ causado por las deformaciones, y está dado por las ecs. 2.78 y 2.79. A continuación se analizará un caso sencillo que facilitará la deducción de un caso más general.

Se considera que las deformaciones están concentradas en un plano a una distancia z' de la interfaz aire-muestra, es decir:

$$\Delta\epsilon = G\delta(z - z'). \quad (2.88)$$

La onda transmitida en la muestra se reflejará parcialmente en esta discontinuidad. El coeficiente de reflexión se determina resolviendo 2.86, resultando

$$r_1 = \frac{ik_0^2}{2k} G. \quad (2.89)$$

Es importante notar que este resultado es correcto a primer orden de aproximaciones. Parte de esta onda reflejada se transmite a través de la interfaz muestra-aire y la onda total reflejada, utilizando 2.84 y 2.85 está dada por:

$$F_x^{(r)} = \left(r_0 + t_0 r_1 \tilde{t}_0 e^{2ikz'} \right) F_0 e^{i(-k_0 z - \omega t)} \quad (2.90)$$

donde \tilde{t}_0 es el coeficiente de transmisión desde la muestra hacia el vacío, es decir:

$$\tilde{t}_0 = \frac{2k}{k_0 + k}. \quad (2.91)$$

Si se resuelve el caso más general de una $\Delta\epsilon(z', t)$, se encuentra que el coeficiente de reflexión r es:

$$r = r_0 + \frac{ik_0^2}{2k} t_0 \tilde{t}_0 \int_0^\infty e^{2ikz'} \Delta\epsilon(z', t) dz', \quad (2.92)$$

con lo que,

$$\Delta r = \frac{ik_0^2}{2k} t_0 \tilde{t}_0 \int_0^\infty e^{2ikz'} \Delta\epsilon(z', t) dz'. \quad (2.93)$$

Introduciendo el coeficiente fotoelástico para relacionar $\Delta\epsilon$ con la deformación $\eta = \partial u / \partial z$ se obtiene:

$$\Delta r \propto \int_0^\infty e^{2ikz'} p(z) \frac{\partial u(z', t)}{\partial z} dz'. \quad (2.94)$$

El módulo cuadrado del espectro detectado dado por la ec. 2.94 es proporcional a la integral utilizada para el cálculo de la sección eficaz Raman en geometría BS (ec. 2.42).

Una vez más debe hacerse notar que en los cálculos solo se está considerando la parte de las tensiones que surgen del pulso acústico que se está propagando por la muestra. Las tensiones cuasiestáticas debidas a la expansión térmica no han sido tenidas en cuenta. Del

mismo modo, las variaciones en el tiempo de la reflectividad inducidas por el desplazamiento de la superficie y de las distintas interfaces producidas por las vibraciones $u(z, t)$ también han sido despreciadas [16, 77, 83].

En adelante se hará la aproximación de medio efectivo en todo lo concerniente a la modulación de la constante dieléctrica por heterogeneidad de los materiales utilizados en las multicapas. En una muestra formada por un apilamiento de diferentes materiales transparentes se estima que el efecto de las distintas interfaces dentro de la muestra no es determinante.

2.4.2. Dispositivo experimental

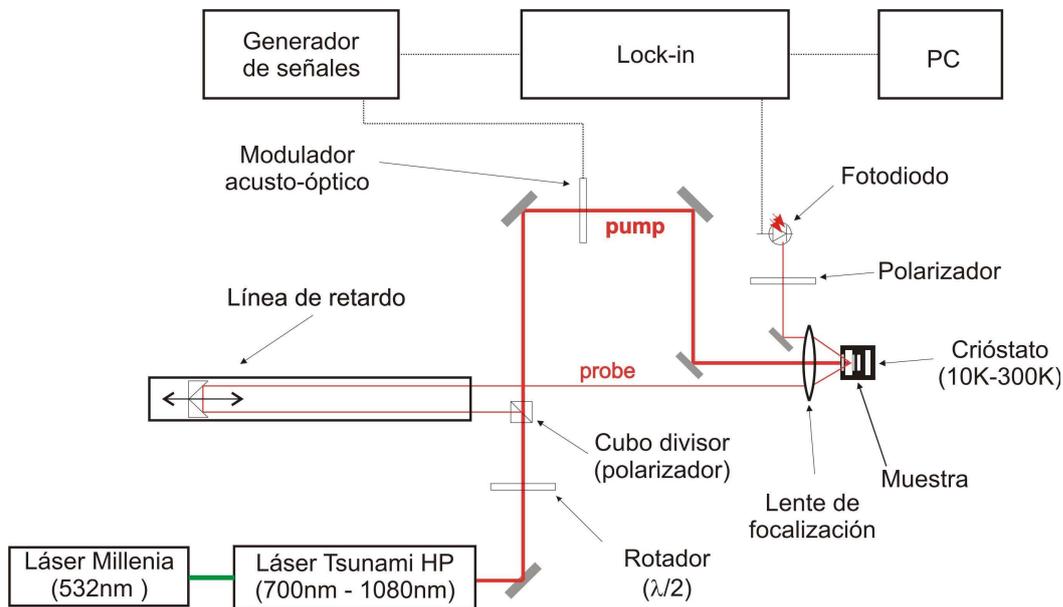


Figura 2.10: Esquema del dispositivo experimental para la generación coherente de fonones acústicos, formado por un sistema de detección sincrónica, el modulador acusto-óptico, los láseres Tsunami y Millenia, la línea de retardo, el crióstato, un detector (fotodiodo) y lentes ópticas, divisores, un rotador, polarizadores y espejos.

En la Fig. 2.10 se muestra esquemáticamente el arreglo experimental estándar para la generación de fonones acústicos coherentes utilizando láseres ultra-rápidos. Un láser de titanio-zafiro provee pulsos de una duración de ~ 100 fs de duración. Un cubo divisor, polarizador, permite separar el haz del láser en dos: el pump y el probe. Mediante un rotador $\lambda/2$ es posible controlar la proporción de energía que va a cada uno de los haces. Un generador de señales se conecta al modulador acusto-óptico (MAO). El pump pasa por el MAO antes de focalizarse sobre la muestra. El haz del probe pasa a través de una línea de retardo y luego se focaliza sobre la muestra utilizando la misma lente que el pump. Generalmente se utilizan lentes del tipo *achromat* con una distancia focal de 50 mm, permitiendo obtener *spots* de $\sim 50 \mu\text{m}$ de diámetro. La intensidad del probe reflejada por la muestra se colecta con un fotodiodo, y esta señal es adquirida sincrónicamente utilizando un lock-in cuya señal de referencia es provista por el generador de señales que alimenta el

MAO. Delante del fotodiodo se coloca un polarizador que funciona como filtro de posibles señales provenientes del haz pump. La muestra se coloca generalmente en un crióstato que permite variar la temperatura entre 10 y 300 K.

A continuación se describen brevemente los componentes principales del dispositivo experimental utilizado.

Láseres

El láser utilizado está compuesto por dos partes. Un láser continuo de estado sólido de 15 Watts (Spectra Physics Millennia) bombea un oscilador Titanio Zafiro (Spectra Physics Tsunami HP). Este emite impulsiones de una duración menor de 100 fs con una tasa de repetición de 82 MHz. Este láser permite variar la longitud de onda central del pulso entre 720 y 1080 nm (entre 1.16 eV y 1.72 eV). El diámetro del haz a la salida del láser es de 2 mm con una divergencia inferior a los 0.6 mrad. A 800 nm se obtiene una potencia de salida de 1.2 W aproximadamente utilizando una potencia de bombeo de 12.5 W. Las potencias típicas para los haces pump y probe serán del orden de 200 y 20 mW respectivamente, variando estos valores en función del tipo de experimento, y de la muestra utilizada. En algunos casos se ha utilizado un láser Maitai de Spectra Physics con características similares a las del Tsunami HP.

Línea de retardo

La línea de retardo tiene como función retardar los pulsos probe respecto de los del pump. Se utilizó una línea de retardo de movimiento continuo de 60 cm de largo. Dos retroreflectores montados sobre la plataforma móvil se combinan con dos espejos externos para formar un camino óptico equivalente a seis veces la longitud de la línea de retardo. De esta manera es posible lograr un retardo de hasta 11.5 ns aproximadamente. La separación entre dos pulsos consecutivos del láser es de 12.2 ns, por lo que la configuración utilizada permite cubrir prácticamente todo el intervalo temporal entre dos excitaciones consecutivas del pump. Las velocidades típicas de desplazamiento de la línea de retardo están en el rango 1-10 mm/s, equivalente a barridos de 20-200 ps/s. En experimentos que involucren grandes retardos, la alineación del probe en la línea de retardo es un parámetro crítico ya que se está trabajando con caminos ópticos con variaciones de aproximadamente 3.5 m, pasando por múltiples espejos y con una plataforma móvil.

Detección sincrónica

Las variaciones de reflectividad que se desean detectar son del orden de 10^{-3} a 10^{-7} . En estos casos se requiere un sistema de detección sincrónica mediante un lock-in. Para su implementación se modula la intensidad del haz pump mediante un modulador acusto-óptico utilizando una señal de referencia de 1 MHz. El lock-in utilizado (Stanford SR 830) se encuentra limitado a frecuencias de 100 kHz. Por esta razón, se utiliza un traductor de frecuencias (Palo Alto PAR 100) que permite trabajar con frecuencias de entrada entre 100 kHz y 12.5 MHz, dando una señal de menor frecuencia que se utiliza como señal de

entrada para el lock-in. La adquisición de datos se realiza en forma continua y simultánea con el desplazamiento de la línea de retardo.

Modulación acusto-óptica

El modulador acusto-óptico utilizado en el haz de excitación está compuesto por un cristal de dióxido de telurio (TeO_2) sobre el que se propaga una onda acústica de 200 MHz. El haz láser atraviesa el cristal y es difractado por la presencia del ultrasonido. La onda acústica de 200 MHz es modulada por una señal cuadrada de 1 MHz provista por un generador de señales. Esta modulación sirve para separar trenes de pulsos (aprox. 80 pulsos por grupo). La frecuencia de modulación se fija en función de la banda pasante del detector utilizado, del lock-in, y del mismo MAO.

Configuraciones de medición

En el presente trabajo se han utilizado dos configuración básicas para la detección en los experimentos de pump-probe: reflectometría e interferometría.

La configuración de reflectometría es la configuración estándar en experimentos de generación de fonones coherentes mediante láseres ultra-rápidos. En reflectometría, el haz *probe* se retrasa respecto del *pump* utilizando la línea de retardo, y se envía directamente hacia la muestra. La señal reflejada es medida por un fotodiodo conectado al sistema de detección sincrónica.

La señal recibida por el fotodiodo es proporcional a la intensidad del haz *probe* reflejado por la muestra, i.e.

$$I(t) = |E_r(t)|^2 = |E_i(t) (r_o + \Delta r(t))|^2 \quad (2.95)$$

$$= \left| E_i(t) r_o \left(1 + \frac{\Delta r(t)}{r_o} \right) \right|^2 \quad (2.96)$$

donde r_o es el coeficiente de reflexión de la muestra en ausencia del campo fonónico, y Δr es la variación de la reflectividad inducida por los fonones.

Definiendo:

$$\frac{\Delta r}{r_o} = \rho(t) + i\phi(t), \quad (2.97)$$

donde ρ y ϕ son las partes real e imaginaria del cambio relativo de reflectividad, se obtiene:

$$|E_r(t)|^2 = |E_i(t) r_o|^2 \left[(1 + \rho(t))^2 + \phi^2(t) \right]. \quad (2.98)$$

La modulación con una señal cuadrada se puede descomponer en una serie de Fourier en ω (frecuencia de referencia), y por lo tanto, el primer término del desarrollo de $\phi^2(t)$ tendrá una frecuencia 2ω , mientras que el desarrollo de $(1 + \rho(t))^2 = 1 + 2\rho(t) + \rho^2(t)$ tendrá un término con una frecuencia ω . El sistema de detección sincrónica sólo es sensible a los cambios de reflectividad modulados a la frecuencia de referencia. Por lo tanto la señal registrada será $I_{mod}(t) \propto \rho E_0^2$. Es decir, a primer orden de aproximaciones, en una medición de reflectometría se medirá solamente la parte real del cambio relativo de reflectividad.

En este tipo de experimentos es esencial garantizar la superposición de los haces *pump* y *probe* sobre la muestra. Para ello primero se realiza una alineación en donde se logren dos trayectos perfectamente paralelos y luego se los hace incidir sobre una única lente para focalizar los dos haces sobre la muestra. La utilización de una cámara suele resultar de utilidad para facilitar la alineación inicial de la superposición de ambos haces.

La utilización de técnicas interferométricas en experimentos de acústica de picosegundos fue introducida en 1996 por Perrin et al. [16, 84], permitiendo acceder a la información correspondiente al desplazamiento de la superficie de una muestra. Un interferómetro de Sagnac, junto con el sistema de detección sincrónica alcanza una resolución espacial en la determinación de desplazamientos de pocos femtómetros.

El funcionamiento del interferómetro de Sagnac se basa en la interferencia de dos haces que recorren un mismo circuito óptico en sentido inverso. En la Fig. 2.11 se presenta un esquema simplificado de este interferómetro. En primer lugar el haz probe (polarizado) incide sobre un cubo polarizador, que es el punto de entrada al circuito óptico. Al pasar por el cubo polarizador, el haz resulta reflejado hacia el segundo cubo divisor, que es el encargado de separar el probe en dos haces que recorrerán el circuito del interferómetro en sentido inverso.

La muestra a estudiar se ubica en una posición asimétrica respecto al segundo cubo separador, y a cada camino óptico entre el cubo divisor y la posición de la muestra se lo denominará brazo del interferómetro. De este modo se obtienen dos pulsos reflejados por el mismo punto de la muestra en dos instantes de tiempo diferentes t y $t + \tau$, donde t es el tiempo de retardo respecto del pulso pump, y τ es el tiempo adicional que le toma a la luz recorrer la diferencia de camino entre los dos brazos del interferómetro. Cualquier perturbación en el esquema de medición cuya constante de tiempo sea mayor que el tiempo de recorrido de un pulso por el circuito completo afectará ambos recorridos del interferómetro por igual, con lo que el mecanismo de medición resultará insensible a cualquier vibración o perturbación exterior de frecuencia menor a 100 MHz.

Un rotador $\lambda/2$ y un retardador $\lambda/4$ se incluyen uno en cada brazo del circuito óptico. Esto permite cambiar la polarización de los haces, y que resulten transmitidos a través del primer cubo divisor (polarizador), y al mismo tiempo introducir un desfase entre entre los dos pulsos de luz de manera tal que el contraste obtenido sea máximo. Para mayores detalles véase el Apéndice A.

De esta manera dos haces recorriendo el interferómetro en sentidos opuestos presentarán un desfase de 90° . A primer orden de aproximaciones, las intensidades recibidas por los diodos A y B serán:

$$I_A = [\rho(t) + \rho(t + \tau)] \pm [\phi(t + \tau) - \phi(t)] \quad (2.99)$$

$$I_B = [\rho(t) + \rho(t + \tau)] \mp [\phi(t + \tau) - \phi(t)] \quad (2.100)$$

Así es posible, en una única medición, separar las contribuciones de las partes real e imaginaria del cambio de reflectividad, simplemente sumando o restando las señales de ambos diodos. Cuando un pulso acústico se propaga en una muestra como la de la Fig. 2.9,

la superficie sufre un desplazamiento. La distancia entre el detector y la superficie libre varía, por lo que debe desplazarse el origen de $z=0$ de la superficie libre a una posición arbitraria. Este desplazamiento de la superficie introduce una fase $e^{2ik_0u_0}$ en el campo eléctrico reflejado, sin modificar su amplitud, que varía únicamente con los cambios en el índice de refracción de los medios. Asimismo, un desplazamiento de la interfaz a $z=d$ producirá únicamente un cambio en la parte imaginaria de la señal. De esta manera, la parte real del cambio de reflectividad estará asociada a cambio de reflectividad inducido por la parte real de la constante fotoelástica, mientras que la parte imaginaria estará asociada principalmente al desplazamiento de interfaces y a la contribución de la parte imaginaria del coeficiente fotoelástico. Cabe mencionar sin embargo, que cambios en las posiciones de las interfaces de una microcavidad óptica como las que se estudian en el Cap. 5 producirán cambios en la parte real de la reflectividad. En estos sistemas las interfaces están separadas por distancias que son del orden de la longitud de onda del láser, y la reflectividad de la estructura completa está dada por la suma de ondas reflejadas y transmitidas en las interfaces del sistema.

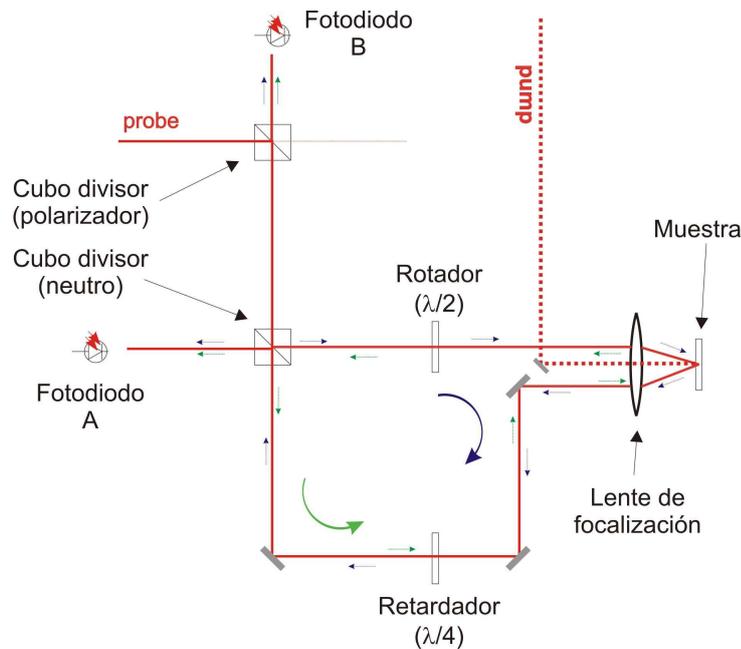


Figura 2.11: Esquema de detección utilizando un interferómetro de Sagnac y dos fotodiodos. Al atravesar el segundo cubo divisor, el haz probe recorre el mismo circuito óptico en sentidos inversos.

En la Fig. 2.12 se muestran las curvas de reflectividad resuelta en tiempo medidas en una película delgada de Cu de 400 nm de espesor, sobre un sustrato de Si orientado en la dirección [001], medidas por Perrin [85]. Se comparan las mediciones de reflectometría (curva negra) e interferometría (curva roja). Puede observarse que luego del fuerte pico de origen electrónico a $t = 0$, la señal de reflectometría es prácticamente plana, con una evolución lenta de origen térmico. El Cu presente un coeficiente fotoelástico nulo para la longitud de onda en que se realizaron estos experimentos. Por otra parte, en el caso de la medición interferométrica se pueden distinguir claramente dos ecos en la señal. Debido a

las sucesivas reflexiones en las interfaces, el pulso acústico generado por el pump alcanza la superficie de la muestra en reiteradas oportunidades, dando lugar a un cambio de fase del haz reflejado. El interferómetro es sensible a estos cambios de fase, originados por el desplazamiento de la superficie. De este caso resulta evidente que ambas configuraciones brindan información complementaria.

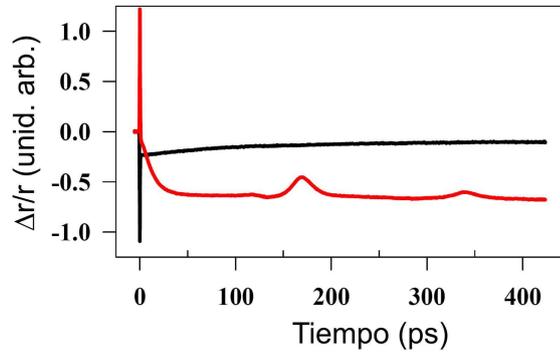


Figura 2.12: Reflectividad resuelta en tiempo en una película delgada de Cu de 400 nm sobre un sustrato de Si [001] medida por Perrin [85]. La curva negra (roja) corresponde a la medición realizada en configuración de reflectometría (interferometría).

2.4.3. Generación coherente de fonones acústicos en superredes

En la Fig. 2.13 se muestra la curva de reflectividad resuelta en tiempo medida con un interferómetro de Sagnac con una longitud de onda de 740 nm sobre una muestra formada por 200 períodos de $(3\lambda/4/\lambda/4)$ GaAs/AlAs para una energía nominal de ~ 1 THz (por excitación directa de la superred, i.e., sin transductores metálicos); en adelante se referirá a esta muestra como SR1000. En la señal se puede observar una fuerte variación inicial de la reflectividad en $t=0$ ps, cuando los haces pump y probe coinciden espacial y temporalmente sobre la muestra. Esta señal se asocia a una contribución electrónica. A continuación de este pulso inicial, las oscilaciones con un período de aproximadamente 20 ps, corresponden a la componente Brillouin del espectro. En el panel interior se muestra un detalle de la ventana temporal entre 50 y 100 ps. Se pueden notar dos características importantes en esta señal: 1) La oscilación de baja frecuencia correspondiente a la componente Brillouin del espectro que se origina tanto en la SR como en el sustrato por la penetración finita del láser, y 2) las oscilaciones de alta frecuencia, con un período de ~ 1 ps, originadas solamente en la SR.

El análisis de los datos experimentales usualmente se realiza en el dominio espectral. Para ello se realiza una transformada de Fourier (TF) de las funciones temporales. Con el fin de atenuar las componentes de baja frecuencia, la TF se efectúa sobre la derivada de la señal. Asimismo, se eliminan los primeros picosegundos de medición para separar la componente electrónica de la modulación de la reflectividad de la componente acústica. En la Fig. 2.14 se muestra la TF de la derivada de la señal mostrada en la Fig. 2.13. En este espectro pueden observarse cuatro picos principales: uno a 0.05 THz, y tres alrededor de 1.00 THz. En el panel interior de la Fig. 2.14 se puede muestra la relación

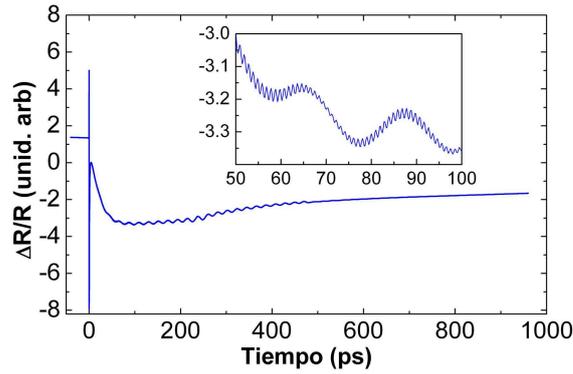


Figura 2.13: Reflectividad resuelta en tiempo medida sobre una superred con el primer minigap de centro de zona centrado en ~ 1 THz. En el panel interior se muestra un detalle de la ventana temporal entre 50 y 100 ps donde se pueden apreciar las componentes de alta frecuencia en la señal.

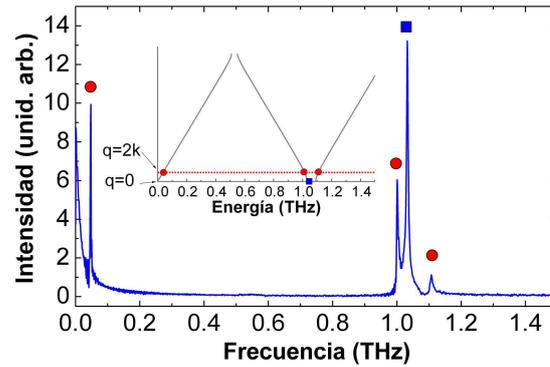


Figura 2.14: Transformada de Fourier de la reflectividad resuelta en tiempo medida sobre una superred con el primer minigap de centro de zona centrado en ~ 1 THz (datos de la Fig. 2.13). En el panel interior se muestra la relación de dispersión y se indican las posiciones correspondientes a los picos señalados en el espectro.

de dispersión correspondiente a la SR estudiada. La línea horizontal indica los vectores de onda $q = 2k$ donde k es el número de onda del láser incidente. Con puntos rojos se indican las intersecciones (3) de esta línea con la relación de dispersión. En azul se indica el punto correspondiente al centro de zona. El pico a 0.05 THz se asocia al modo Brillouin de la estructura; cabe señalar que este modo es también detectable en el sustrato de GaAs. Los picos a 1.000 y 1.107 THz corresponden a excitaciones con vector de onda $q = 2k$ (indicados con círculos rojos), mientras que el pico a 1.032 THz (indicado con un cuadrado azul) es una excitación con vector de onda $q \sim 0$. Estos fonones acústicos son generados y detectados solamente en la SR. Al igual que en los procesos de dispersión Raman, sólo se observa un pico a $q \sim 0$ por razones de simetría.

En este capítulo se introdujeron los conceptos básicos de las técnicas utilizadas para la caracterización óptica de los sistemas estudiados. Se presentaron en detalle dos técnicas experimentales: la dispersión Raman, y la generación coherente de fonones acústicos

con láseres ultra-rápido. La primera servirá para la caracterización espectral y para la asignación de modos acústicos de las nanoestructuras; mientras que la segunda será utilizada en el estudio de los procesos de generación y detección y de la dinámica de fonones acústicos en multicapas. Se describieron los dispositivos experimentales utilizados y los modelos físicos sobre los que se basan las simulaciones realizadas. Finalmente se presentaron los resultados típicos obtenidos con estas técnicas en SR acústicas. En el siguiente capítulo se estudiarán sistemas basados en superredes y nanocavidades simples. En particular se estudiarán la dinámica de fonones acústicos, la transducción cuasimonocromática de luz-sonido de ultra-alta frecuencia y los efectos de la modificación de la densidad de estados acústicos en los procesos de generación coherente.

Capítulo 3

Superredes y nanocavidades acústicas

Previamente se mostró que existe una equivalencia entre las ecuaciones que describen la propagación de ondas electromagnéticas y elásticas. Esta ha sido la base para el diseño de cristales fonónicos en los que la impedancia acústica se modula de la misma forma que el índice de refracción es modulado en los cristales fotónicos. Estos conceptos han sido demostrados experimentalmente para frecuencias comprendidas entre kHz y MHz. En estos rangos de energías es posible realizar experimentos sencillos que permiten estudiar la propagación de ondas en medios altamente dispersivos, entre ellos el estudio de los tiempos de transmisión a través de barreras fonónicas simples y múltiples [10, 86, 87], que en estructuras fotónicas requieren de mediciones complejas e indirectas.

Reduciendo el tamaño característico de las estructuras, es posible prever aplicaciones de control coherente de luz, carga, y vibraciones mediante la ingeniería de fonones en el rango GHz-THz. El desarrollo de técnicas de crecimiento epitaxiales como MBE ha permitido el estudio de dispositivos fonónicos unidimensionales basados en semiconductores usuales como son el GaAs y el AlAs, y con espesores de pocos nanómetros. Las características de confinamiento y amplificación de nanocavidades acústicas fueron demostradas en experimentos de dispersión Raman [3, 4].

A pesar de la similitud entre los sistemas fotónicos y acústicos, existen problemas que son específicos de la nanofonónica del rango GHz-THz, y que representan una barrera para la implementación de estos conceptos en aplicaciones tecnológicas. Por ejemplo, el desarrollo de técnicas de caracterización de las multicapas hiperacústicas con suficiente resolución temporal y espectral es hoy un tema activo de investigación [88]. La ausencia de fuentes y detectores monocromáticos es uno de los aspectos de este problema. En el presente capítulo se extienden algunos conceptos de acústica en el rango kHz-MHz al hipersonido, demostrando en el dominio temporal las características de confinamiento y transmisión resonante en superredes y nanocavidades en el rango GHz-THz. Para estudiar la transmisión en estos dispositivos simples se utilizan dos transductores metálicos de banda ancha. Luego se estudian las superredes y nanocavidades como generadores y detectores de fonones acústicos coherentes, orientados a la monocromaticidad. Su caracterización se realiza combinando uno de estos dispositivos cuasimonocromáticos con un

transductor de espectro ancho. Finalmente, habiendo estudiado las características de los transductores de banda ancha basados en películas delgadas de aluminio, y los transductores cuasimonocromáticos basados en superredes y nanocavidades de semiconductores, se estudia cómo es posible cambiar las características de generación de una película metálica al cambiar la densidad de estados acústicos utilizando una nanocavidad.

El capítulo se encuentra dividido en cuatro secciones: la Sec. 1 está dedicada al estudio de la transmisión de fonones acústicos en espejos y nanocavidades utilizando transductores formados por una película delgada de Al. El estudio de generadores y detectores cuasimonocromáticos de fonones coherentes basados en superredes y nanocavidades de GaAs/AlAs se presenta en la Sec. 2. En la Sec. 3 se combinan los transductores metálicos con nanocavidades acústicas, formando nanocavidades híbridas metal-óxido, y se analizan sus características como generadores de fonones coherentes. Finalmente, en la Sec. 4 se presentan las conclusiones de este capítulo.

3.1. Dinámica de fonones acústicos en cavidades y espejos de hipersonido

En 1979 Narayanamurti *et al.* [15], utilizando generadores superconductores y detectores bolométricos, presentaron los primeros resultados de transmisión de fonones a través de lo que ellos denominaron un filtro de fonones dieléctrico. En 1995 James *et al.* realizaron estudios experimentales de transmisión acústica a través de una estructura formada por capas alternadas de agua y plexiglás (metacrilato) y observaron la existencia de múltiples gaps en el espectro entre 0.1 y 0.5 MHz. Retirando una capa de plexiglás de la estructura, notaron que aparecía un modo de transmisión en cada gap [89]. Siete años más tarde, Munday *et al.* [90] realizaron experimentos de transmisión en estructuras periódicas formadas por cilindros de distintos diámetros conectados entre sí, y observaron modos de transmisión bien definidos dentro de los gaps acústicos cuando se introducía un defecto en el arreglo. Todos estos trabajos presentan estudios de acústica en el rango kHz-MHz.

Por otra parte, Spielmann *et al.* demostraron en 1994 el fenómeno de *tunneling* de ondas electromagnéticas a través de un gap fotónico en un cristal fotónico unidimensional [9]. El tiempo de tránsito del pulso por la estructura resultó independiente del espesor del cristal fotónico, de manera análoga a lo que ocurre con un electrón al atravesar una barrera de potencial, fenómeno conocido bajo el nombre de efecto Hartman [8]. Yang *et al.* [10] estudiaron el equivalente acústico en el rango MHz en el año 2002.

En esta sección se presentan los resultados de los experimentos de transmisión de fonones acústicos longitudinales a través de espejos y nanocavidades acústicas con frecuencias de 100 y 200 GHz. Estos experimentos se basan en técnicas de generación coherente de fonones acústicos como las descritas en el Cap. 2, utilizando películas delgadas de aluminio como transductores. A continuación se describen las muestras utilizadas.

3.1.1. Descripción de las muestras

En la Fig. 3.1 se muestra la simulación de la interacción de un pulso de sonido con un material uniforme (panel a), un espejo de fonones (panel b) y una nanocavidad acústica (panel c). La línea vertical roja indica la interfaz entre el sustrato y la muestra, en $z=0$. El espejo de fonones está formado por 20 períodos de GaAs/AlAs 34.445/14.075 nm ($3\lambda/4, \lambda/4$) con ZC[1] centrado en 100 GHz. La cavidad, por otro lado, está formada por dos espejos de 10 períodos cada uno con la misma relación de espesores, y un espaciador de GaAs $\lambda/2$, con el modo ZC[1] centrado en 100 GHz, con un ancho nominal de ~ 0.34 GHz. Para el caso del material uniforme, se consideró una capa única de GaAs con el espesor total del espejo de fonones.

Para todos los casos se muestra la evolución temporal calculada con el método de las matrices de transferencia de un pulso gaussiano centrado en 100 GHz con un ancho de 2 GHz cuando se lo hace incidir desde el lado del sustrato hacia la muestra. Notar que el ancho de este pulso gaussiano es mayor que los 0.34 GHz del ancho del modo de cavidad, y menor que los 9 GHz del minigap acústico. En la Fig. 3.1a se puede ver que el pulso llega hasta el final de la muestra y se refleja totalmente en la interfaz con el aire. Es importante destacar que todas las componentes frecuenciales llegan a la superficie de la muestra. Se puede ver que para el espejo (Fig. 3.1b), toda la energía acústica es rápidamente reflejada hacia el sustrato desde la interfaz sustrato/muestra, y sólo una fracción del pulso llega a la superficie de la muestra. Finalmente, en el caso de la nanocavidad (Fig. 3.1c), una parte importante de la energía se transfiere al modo de cavidad, concentrándose en la capa central de GaAs, decayendo lentamente en el tiempo, mientras que el resto de la energía se refleja rápidamente hacia el sustrato.

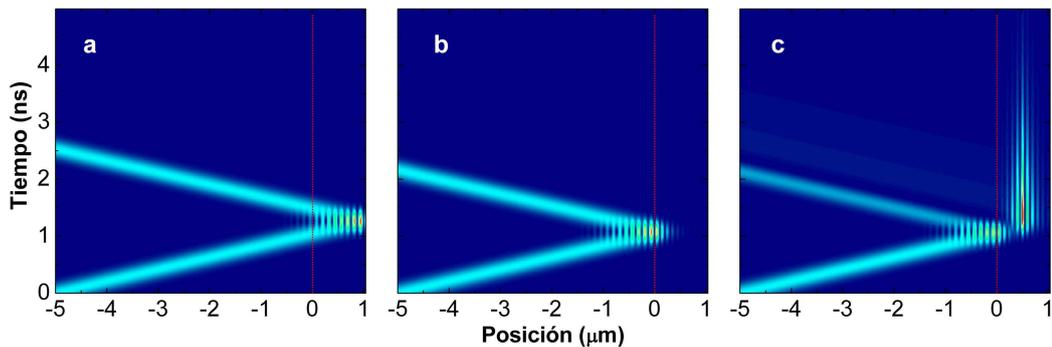


Figura 3.1: Evolución temporal calculada del desplazamiento acústico de un pulso gaussiano centrado en 100 GHz con un ancho de 2 GHz enviado hacia la muestra desde el lado del sustrato para: a) una capa uniforme de GaAs, b) un espejo de fonones, y c) una nanocavidad acústica. La línea roja indica la posición $z=0$, correspondiente a la interfaz sustrato/muestra.

Para el estudio experimental de la transmisión de fonones acústicos a través de espejos y cavidades se diseñaron y crecieron cuatro muestras. En la Fig. 3.2 puede observarse un esquema de la estructura de los dispositivos de GaAs/AlAs estudiados en la presente sección. Las muestras fueron crecidas por epitaxia de haces moleculares sobre sustratos

de GaAs pulidos en ambas superficies y orientados en la dirección (001). Las estructuras están formadas por dos espejos de Bragg de 10 períodos de GaAs/AlAs ($3\lambda/4, \lambda/4$) cada uno, con $\lambda = 47.26$ y 56.48 nm para el GaAs y el AlAs respectivamente. Estos espesores se corresponden con una relación de dispersión con minigaps cada 50 GHz, es decir, con ZC[1] centrado en 100 GHz.

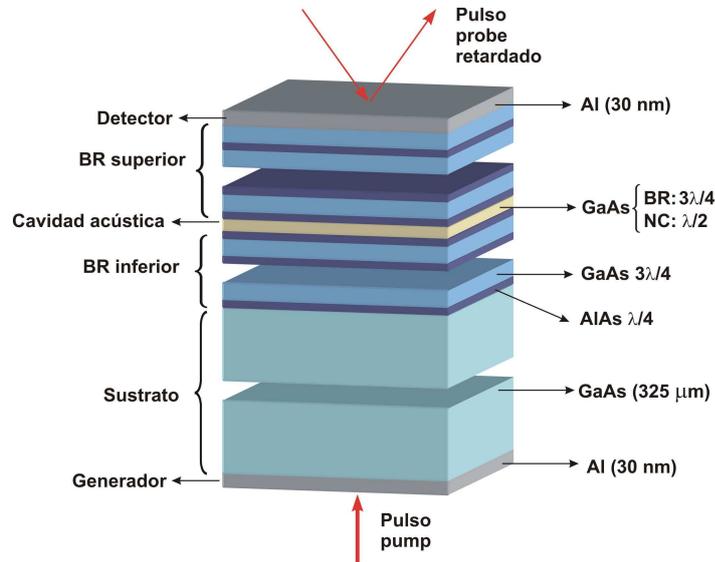


Figura 3.2: Esquema de un dispositivo acústico simple, y configuración de medición para los experimentos de transmisión.

Entre los dos espejos se intercala una capa de GaAs. Eligiendo apropiadamente el espesor de dicha capa se puede formar un BR o una nanocavidad. El primer conjunto de muestras está formado por dos estructuras donde la capa central de GaAs toma los valores $3\lambda/4$ y $\lambda/2$ que se denominarán BR100 y NC100. BR100 es una superred con el ZC[1] optimizado en 100 GHz, mientras que NC100 es una nanocavidad con el modo centrado en la misma energía.

La tercera muestra (NC100_{BZ}) consiste en una nanocavidad con espejos formados por 10 períodos ($\lambda/4, \lambda/4$) de GaAs/AlAs y un espaciador de GaAs de espesor 2λ para una frecuencia de 100 GHz. La relación de espesores en los espejos maximiza el ancho del minigap ZE[1] en 100 GHz. La estructura presenta un modo de cavidad centrado en ZE[1], mientras que el minigap ZC[1] permanece cerrado.

Finalmente, la última muestra es otra nanocavidad (NC200) con espejos formados por 10 períodos ($3\lambda/4, \lambda/4$) de GaAs/AlAs, con $\lambda = 23.63$ y 28.24 nm para el GaAs y el AlAs respectivamente. Una capa $3\lambda/2$ de GaAs forma el espaciador de la nanocavidad. Esta estructura presenta un modo confinado en 200 GHz, centrado en ZC[1].

En las cuatro muestras se depositaron películas de Al de 30 nm de espesor nominal sobre ambas caras, que actúan como generadores (cara sustrato), y como detectores (superficie de la muestra) de fonones coherentes longitudinales. Todas las muestras estudiadas en la presente sección fueron crecidas por el grupo de A. Lemaître en el Laboratoire de Photonique et des Nanostructures, Centre National de la Recherche Scientifique, Marcouss-

sis, Francia. Los depósitos de Al fueron realizados por el grupo técnico del Institut des NanoSciences de Paris, Francia.

3.1.2. Experimentos de transmisión de hipersonido

En la configuración más usual en experimentos de generación coherente de fonones acústicos con láseres ultra-rápidos ambos haces, pump y probe, inciden sobre el mismo lado de la muestra [56, 77, 79, 80], como se ilustra en el panel izquierdo de la Fig. 3.3. En geometría de transmisión de pulsos de fonones, por el contrario, la generación debe realizarse de un lado de la muestra y la detección del lado opuesto, por lo que pump y probe inciden sobre las caras opuestas de una muestra (Fig. 3.3, derecha [91]). La utilización de un interferómetro de Sagnac junto con los protocolos de alineación desarrollados por el grupo de B. Perrin en el Institut des NanoSciences de Paris permiten realizar experimentos en geometría de transmisión de fonones en forma sistemática y relativamente sencilla. En la geometría usual se utiliza una única lente de focalización, mientras que en la geometría de transmisión se requieren dos lentes, una para cada haz. En ambos esquemas es posible utilizar tanto una configuración de detección de reflectometría como el interferómetro de Sagnac previamente descrito.

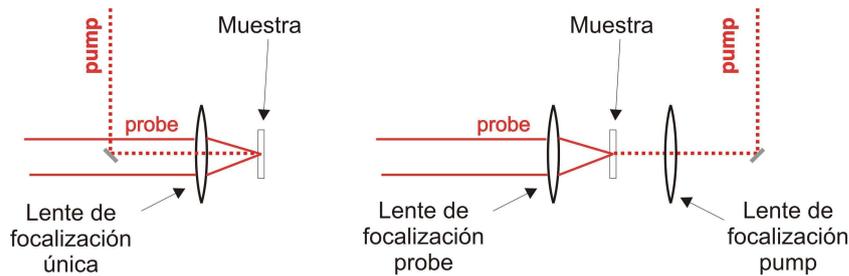


Figura 3.3: Esquemas de medición. Izquierda: geometría usual, con los haces pump y probe incidiendo desde el mismo lado de la muestra. Derecha: geometría de transmisión, con el pump incidiendo desde un lado de la muestra, y el probe desde el otro lado del sustrato.

Para realizar los experimentos de transmisión acústica se utilizaron las películas delgadas de Al como generadores y detectores de fonones acústicos longitudinales. Para la generación del hipersonido, se envían pulsos láser de 200 fs de duración con una longitud de onda central de 800 nm y con una frecuencia de repetición de 79 MHz sobre la capa de Al depositada sobre el lado del sustrato. El haz se focaliza sobre un *spot* de $\sim 60\mu\text{m}$ de diámetro. La energía típica utilizada es de 8 nJ/pulso. Debido a la longitud de absorción en el Al, se generan pulsos acústicos que contienen frecuencias de hasta 250 GHz. El espesor de la película de Al fue optimizado en 30 nm (del orden del *skin-depth* del Al a 800 nm) de manera que la interacción directa entre la luz y el semiconductor sea despreciable tanto para la generación como para la detección. Los experimentos se realizaron a 15 K para disminuir la atenuación del pulso acústico en los $\sim 325\mu\text{m}$ de GaAs que forman el sustrato. Para medir la variación de la parte imaginaria $\phi(t)$ de la reflectividad óptica compleja de la superficie del dispositivo, se utilizó la configuración de interferometría.

En la Fig. 3.4 se presenta la evolución temporal de la variación de la reflectividad medida ϕ en la muestra NC100. Esta señal es puramente de origen acústico, en contraste con las obtenidas en similares experimentos con ambos haces, pump y probe, del mismo lado de la muestra. La curva presenta señales superpuestas originadas por múltiples ecos con formas similares pero con intensidades diferentes. Debido a la presencia de superficies libres a ambos lados de la muestra, la energía acústica es reflejada totalmente y se propaga en ambos sentidos a lo largo del sustrato. El pulso acústico llega a la superficie de la muestra a intervalos regulares de $2nT$, donde $T \approx 68$ ns es el tiempo de propagación a través del sustrato. Estos ecos se replican cada 12 ns, que es el período de repetición del láser. Consecuentemente, en una ventana temporal se verán ecos de orden superior correspondientes a excitaciones previas. Asimismo, se puede observar en la Fig. 3.4 que cada eco aparece dos veces, cada uno correspondiente a un brazo del interferómetro de Sagnac. En el panel de la derecha de la misma figura, se muestra la variación temporal de la reflectividad durante el primer eco ($n=0$). Para garantizar una resolución espectral compatible con los tiempos de vida media esperados para el modo de cavidad, las TF de ϕ se realizaron sobre una ventana temporal de 3.5 ns. Como se verá más adelante, en las sucesivas reflexiones los efectos de dispersión en los dispositivos hacen que la contribución de los ecos al análisis de los datos sea despreciable para las frecuencias de interés.

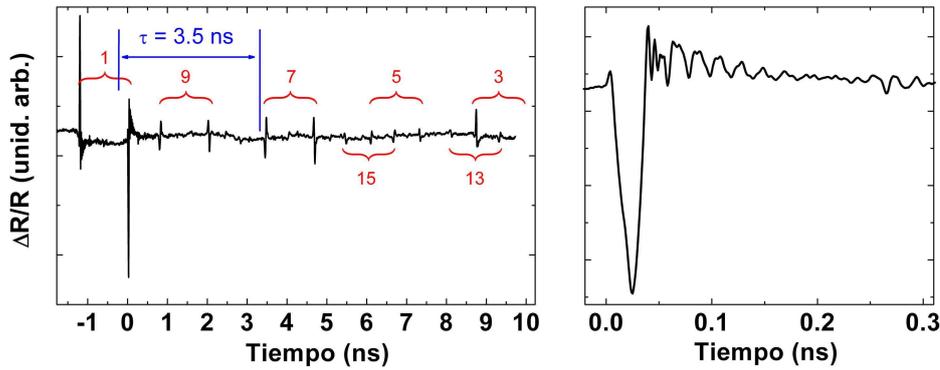


Figura 3.4: Izquierda: reflectividad resuelta en tiempo de la muestra NC100 medida con un interferómetro de Sagnac. Las llaves indican pares sucesivos de ecos y los números corresponden a la cantidad de veces que el pulso atravesó el sustrato ($2n+1$). Las líneas verticales definen la ventana temporal para el análisis de los datos. Derecha: detalle de la señal durante los primeros 300 ps. Curva experimental medida por AH y BP [91].

En la Fig. 3.5 se comparan la amplitud de la transformada de Fourier de la derivada de las señales experimentales medidas en las muestras BR100 (panel superior izquierdo) y NC100 (panel superior derecho), con la transformada de Fourier de la deformación simulada en la superficie de las muestras normalizadas por un espectro acústico de referencia calculado según la Ref. [92]. Los efectos del espesor de la película delgada de Al, como de la propagación no lineal a 15 K en el sustrato de GaAs de $325 \mu\text{m}$ se tuvieron en cuenta para el cálculo de este espectro de normalización. La potencia del haz de excitación determina las condiciones iniciales de propagación del pulso de hipersonido a través del sustrato. Pe-

queñas variaciones en esta potencia inducen cambios importantes en el espectro de fonones que inciden sobre los dispositivos (debido a efectos de anarmonicidad), pero no afectan las características principales que se pueden observar en los espectros de transmisión a través de los dispositivos fonónicos. El acuerdo entre simulaciones y experimentos es notable, incluyendo la presencia los tres minigaps a 50, 100 y 150 GHz en el espejo BR100. Los mismos gaps aparecen en la muestra NC100, pero ahora junto a picos correspondientes a los modos de cavidad. Dado que la relación de espesores en los espejos es $(3\lambda/4, \lambda/4)$, el modo de cavidad aparece centrado en ZC[1], mientras que ZE[1] (ZE2) aparece corrido hacia bajas (altas) frecuencias respecto al centro del minigap. En las simulaciones mostradas en la Fig. 3.5 se utilizaron los espesores obtenidos por difracción de rayos X de alta resolución, con una corrección de -0.5% para reproducir la posición del modo de cavidad cerca de 100 GHz. El ajuste en el resto de las oscilaciones a los lados del minigap se dejan para un análisis posterior, dado que no afectan las conclusiones principales en el análisis de las características de confinamiento del modo de cavidad.

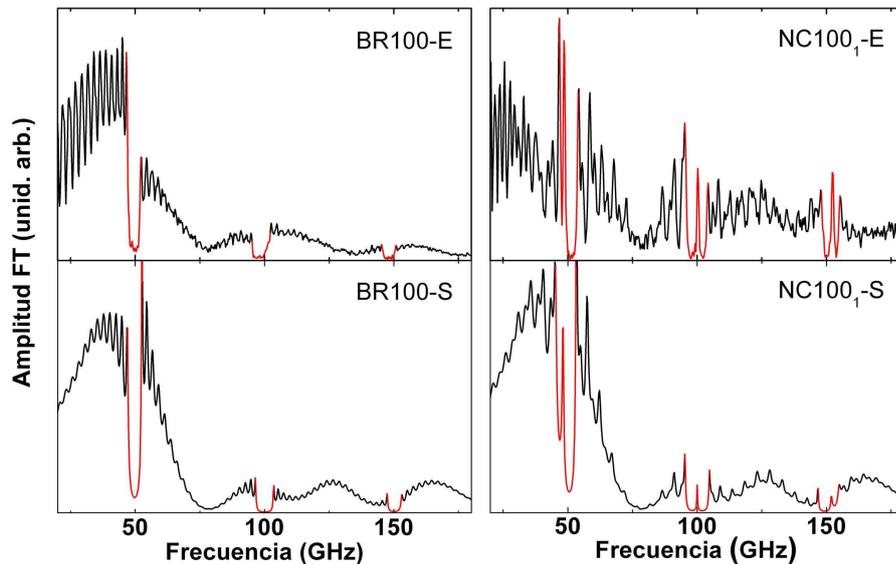


Figura 3.5: Transformada de Fourier de la derivada temporal de la señal experimental de reflectividad resuelta en tiempo (E) para las muestras BR100 (izquierda) y NC100 (derecha) comparadas con las transformadas de Fourier de la deformación calculada en la superficie de la muestras (S), teniendo en cuenta el espectro del pulso de fonones incidente. Las bandas de energías correspondientes a los stop-bands se indican en rojo. Experimentos realizados por AH y BP. El espectro de fonones incidentes fue calculado por EP [91].

A continuación se presentarán los resultados de transmisión de hipersonido sobre las otras dos nanocavidades: NC100_{BZ} y NC200. Como se mencionó en la sección anterior, NC100_{BZ} tiene una relación de espesores que maximiza el primer minigap del borde de la zona de Brillouin. En la Fig. 3.6 se muestra la transformada de Fourier de la derivada temporal de la señal experimental de reflectividad resuelta en tiempo (panel superior) comparada con la transformada de Fourier de la deformación calculada en la superficie de

la película de Al. En rojo se indica la banda correspondiente al stop-band. En la señal experimental se puede observar claramente la presencia del modo de cavidad a 200 GHz, y de las dos bandas de alta reflectividad que definen el stop-band. El resto de los picos anchos en el espectro experimental son generados por los efectos de propagación acústica no lineal en el sustrato (anarmonicidad, conversión de frecuencias). En el panel inferior se incluye en gris la curva correspondiente a la muestra NC100. Puede notarse que la cavidad optimizada en borde de zona tiene un stop-band dos veces más ancho que la cavidad optimizada en centro de zona. Esto está de acuerdo con la ec. 1.22:

$$\Delta \sim 2\epsilon \frac{v}{d} \text{sen} \left[\frac{\nu\pi (1-\alpha)v_2 - \alpha v_1}{2(1-\alpha)v_2 + \alpha v_1} \right], \quad (3.1)$$

donde puede observarse que al disminuir el período d en un factor 2, el ancho del minigap aumenta al doble.

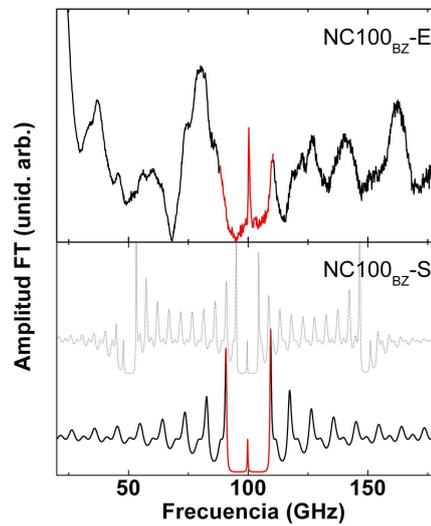


Figura 3.6: Transformada de Fourier de la derivada temporal de la señal experimental de reflectividad resuelta en tiempo (E) para la muestra $NC100_{BZ}$ comparadas con la transformada de Fourier de la deformación calculada en la interfaz aire/muestra (S). Las bandas de energías correspondientes a los stop-bands se indican en rojo. En ambos casos se incluye la transformada de Fourier de la deformación calculada en la aire/muestra de la cavidad $NC100_1$ (gris); la curva fue desplazada verticalmente para mayor claridad.

Una manera alternativa de aumentar el ancho del minigap consiste en, conservando la relación de espesores ($3\lambda/4$, $\lambda/4$), aumentar la frecuencia para la que se encuentra diseñada la estructura. En la Fig. 3.7 se muestran los resultados de los experimentos y simulaciones de transmisión para la muestra NC200. En el panel superior se pueden observar los primeros dos minigaps, ZE[1] y ZC[1], a ~ 100 y ~ 200 GHz respectivamente. El modo de cavidad en ZC[1] se encuentra centrado en el minigap, mientras que el modo en ZE[1] se encuentra desplazado hacia bajas energías, de manera similar a lo que ocurre con la muestra NC100. A frecuencias mayores a 200 GHz la intensidad del espectro decae fuertemente. Asimismo existen fuertes oscilaciones de intensidad en todo el espectro, en particular se puede notar

un mínimo en 75 GHz. Estas oscilaciones forman la envolvente del espectro incidente que llega a la nanocavidad, y no están relacionadas con la función de reflectividad. Las oscilaciones originadas por efectos de tamaño finito que pueden apreciarse en la simulación del desplazamiento de la superficie mostradas en el panel inferior de la Fig. 3.7 no pueden resolverse en la curva experimental. Cabe destacar, una vez más, el acuerdo entre las simulaciones y las curvas experimentales, que reproducen exactamente la posición y forma de los modos resonantes. Asimismo, es importante notar la posibilidad de generar y detectar fonones acústicos coherentes hasta aproximadamente 250 GHz en geometría de transmisión utilizando películas delgadas de Al como transductores.

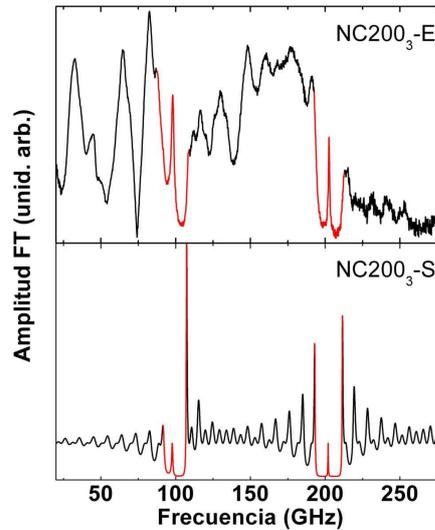


Figura 3.7: Transformada de Fourier de la derivada temporal de la señal experimental de reflectividad resuelta en tiempo (E) para la muestra NC200 comparada con la transformada de Fourier de la deformación calculada en la interfaz aire/muestra (S). Las bandas de energías correspondientes a los stop-bands se indican en rojo.

3.1.3. Tiempo de vida media en una cavidad de fonones

El ancho espectral del modo de cavidad Δf (FWHM⁴) de la muestra NC100, directamente relacionado con el tiempo de vida media de los fonones confinados, es de 0.43 GHz, cercano al valor teórico de 0.32 GHz. Se realizaron transformadas de Fourier parciales, con ventanas temporales de 500 ps centradas a espacios regulares de tiempo. En la Fig. 3.8 se muestra la evolución temporal de las distintas componentes frecuenciales de la señal. En el panel de la derecha se incluye la curva medida de reflectividad resuelta en tiempo, y en el cuadro superior, la relación de dispersión para facilitar la identificación de las distintas partes de la señal. Las líneas punteadas verticales indican las posiciones espectrales de los tres modos de cavidad. Las frecuencias correspondientes a estos modos están presentes a lo largo de toda la medición. La señal correspondiente al modo ZC[1] es particularmente intensa. A los lados de estos picos se observan señales intensas que desaparecen rápida-

⁴ancho total a media altura

mente. Además de las oscilaciones originadas por el muestreo de los datos, se observan decaimientos regulares en los modos de cavidad, y no aparecen características particulares en los momentos de llegada de los ecos de orden superior (a 0.5 y 1.75 ns) para los modos en ZC[1] y ZE[2]. Los ecos están formados principalmente por componentes de baja frecuencia, que pueden verse claramente entre 0.0 y 0.5 ns, y entre 1.25 y 1.75 ns para frecuencias menores a 50 GHz. No se pueden distinguir contribuciones de estos ecos con frecuencias mayores a 80 GHz. El modo de cavidad muestra un tiempo de decaimiento de 1.38 ns, en acuerdo con el valor teórico obtenido de Δf ($\tau = \sqrt{3}/\pi\Delta f = 1.28$ ns), mientras que el modo del borde del espejo decae en 0.26 ns.

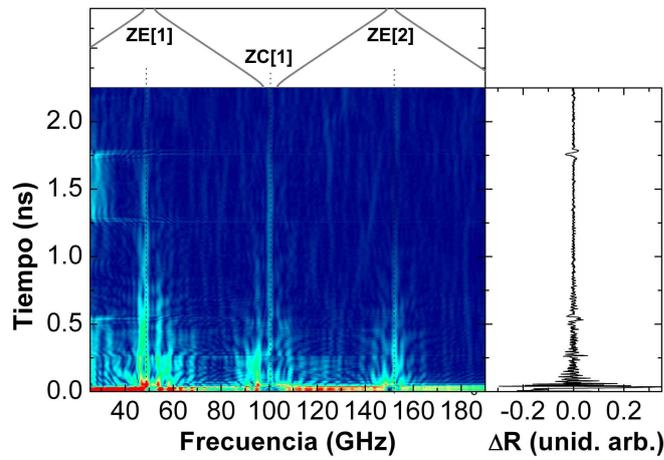


Figura 3.8: Evolución temporal de las componentes frecuenciales que forman la señal de reflectividad resuelta en tiempo para la muestra NC100. Cuadro superior: relación de dispersión de la estructura periódica asociada. Las líneas verticales indican la posición de los tres primeros modos de cavidad. Derecha: reflectividad resuelta en tiempo medida con el interferómetro de Sagnac.

En experimentos de espectroscopía de transmisión de luz se mide la intensidad del campo electromagnético que se transmite a través de una determinada muestra, es decir que se tiene acceso sólo al módulo, y no a la fase de la señal. La determinación de los tiempos de transmisión requiere de experimentos más complejos, como el descrito en la Ref. [9]. Una ventaja de las técnicas de acústica de picosegundos respecto a la espectroscopía de transmisión de luz es que el espectro de transmisión se obtiene a partir de una función definida en el dominio temporal. De esta manera, se tiene información de la evolución temporal de los paquetes de onda. En otras palabras, se tiene acceso a la fase ϕ de la transmisión, que a su vez permite conocer el tiempo de tránsito de grupo $t_G = L/v_G$, asociado al paso de un pulso de sonido a través del dispositivo acústico, donde L es la longitud total del dispositivo y v_G es la velocidad de grupo. La definición de esta magnitud básica en medios altamente dispersivos fue fuertemente cuestionada luego del trabajo original de Brillouin. La realización de experimentos en el dominio MHz [93] permitió demostrar que esta magnitud sigue siendo válida aún en medios altamente dispersivos, y que puede ser determinada de la definición formal $t_G = L/(d\omega/dk) = d\phi(\omega)/d\omega$ o filtrando numéricamente los datos,

como se explicará más adelante. Este último método es más robusto respecto al ruido experimental, y fue el utilizado para estudiar la evolución temporal de la nanocavidad NC100. Para determinar el tiempo de tránsito a través de la estructura utilizando filtros numéricos [93] se procede de la siguiente manera:

1. A partir de la función de transmisión acústica resuelta en tiempos $S(t)$, se calcula $S(\omega)$ mediante una transformada de Fourier;
2. Se define un filtro $f_0(\omega)$, y se genera una nueva función espectral $S_f(\omega) = f_0(\omega)S(\omega)$;
3. Se calcula $S_f(t)$ como la antitransformada de Fourier de $S_f(\omega)$;
4. Se determina el máximo de $S_f(t)$, que está asociado al tiempo de transmisión¹ de la frecuencia central ω_0 del filtro.

En la Fig. 3.9 se comparan los tiempos de transmisión experimentales (puntos azules) y simulados (línea continua negra) a través del dispositivo acústico, utilizando filtros gaussianos de 0.01 GHz de ancho. Con línea punteada roja se indica un tiempo de transmisión de referencia $t_{ef} = \sum d_i/v_i$, donde i se refiere a cada una de las capas de la nanocavidad. El acuerdo entre las curvas teórica y experimental es notable. Existen, sin embargo, pequeños desfases en las oscilaciones de transmisión en la parte de altas energías al lado del stop-band. Para el modo de cavidad se observan tiempos de tránsito mayores a 1 ns, dando cuenta de un confinamiento fuerte de fonones resonantes en la capa central de la estructura. A partir de esta figura se puede concluir que los fonones resonantes presentan un tiempo de vida media más largo que los fonones de los materiales masivos. Este resultado es similar al observado para microcavidades ópticas, un efecto que es la base de la modificación de la distribución angular de la luz emitida, y de las tasas de emisión, para emisores ópticos como excitones inmersos en microcavidades.

3.1.4. Efecto Hartman en fonones acústicos

El efecto Hartman, es el efecto túnel a través de una barrera de potencial, cuando el tiempo de “tunneling” tiende a una constante para barreras anchas. En decir, que el tiempo de transmisión de una partícula a través de una barrera de potencial por efecto túnel se vuelve independiente del ancho de la misma. Este efecto fue descrito por Hartman en 1962 para electrones. En el trabajo original de Hartman [8] se establecen tres regímenes de transmisión de un electrón a través de una barrera de potencial: 1) para barreras angostas, el tiempo de transmisión es mayor que el tiempo requerido por el paquete de ondas en atravesar una distancia igual al ancho de la barrera; 2) para barreras intermedias, el tiempo de transmisión es independiente del ancho de la barrera; y 3) para barreras muy gruesas, este tiempo depende linealmente del ancho de la barrera.

El efecto Hartman puede ser extendido al contexto de la fotónica, estudiando el tiempo de transmisión de la luz a través de una estructura que presente un gap fotónico. Este mismo fenómeno da lugar a conclusiones controvertidas, dado que de mediciones indirectas

¹Cabe mencionar que el $t = 0$ para los tiempos de transmisión está determinado por el $t = 0$ definido en $S(t)$.

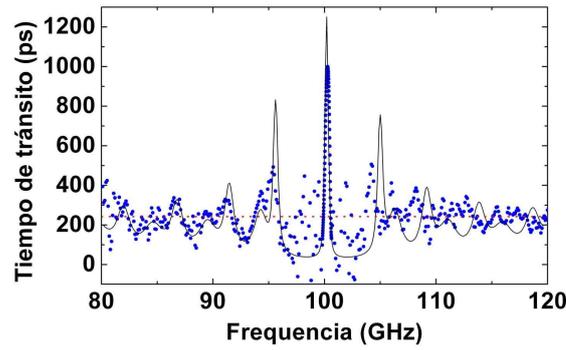


Figura 3.9: Tiempo de tránsito de grupo obtenido del filtrado numérico de la señal medida en la muestra NC100 con filtros gaussianos centrados a energías variables con anchos de 0.01 GHz (puntos azules). Se realizó un corrimiento temporal constante para ajustar el tiempo de tránsito de grupo teórico a través de la nanocavidad, calculado con el mismo método (línea continua negra). La línea punteada roja indica el tiempo de tránsito de referencia $t_{ef} = \sum d_i/v_i$.

es posible deducir velocidades de la luz mayores a c [9, 94] para estructuras fotónicas suficientemente anchas. El efecto Hartman puede también extenderse a la transmisión de ondas acústicas. En el año 2002, Yang *et al.* [10] estudiaron este problema en el rango MHz, demostrando que la propagación del sonido con frecuencias dentro del gap de un cristal fonónico es el análogo clásico del efecto túnel de una partícula a través de una barrera de potencial. A continuación se presentará el estudio del efecto Hartman en el contexto de la nanofonónica, analizando el tiempo de transmisión de fonones acústicos en el rango GHz-THz a través del minigap de un espejo de hipersonido.

En la Fig. 3.9 es posible observar que dentro del stop-band, los tiempos de tránsito son menores que el tiempo efectivo lineal de tránsito t_{ef} a través de la estructura. El fuerte ruido en la señal es originado por la baja transmisión en los stop-bands. Estos tiempos de tránsito reducidos son el equivalente acústico del efecto Hartman que sufre un electrón al atravesar una barrera de potencial [8], en el régimen en que el tiempo de transmisión es independiente del ancho de la barrera.

En la Fig. 3.10 se muestra el tiempo de transmisión calculado a través de una estructura periódica formada por bicapas ($3\lambda/4, \lambda/4$) de GaAs/AlAs centrada en 20.0 cm^{-1} . Se considera que la estructura está inmersa en un medio infinito de GaAs, para evitar los efectos de reflexiones en las fronteras del sistema. El pulso incidente tiene una distribución gaussiana de frecuencias, y se encuentra centrado en la misma energía del BR, con un ancho $2\sigma = 0.05 \text{ cm}^{-1}$. Se puede observar que para estructuras con más de 12 períodos el tiempo de transmisión alcanza un valor constante de $\sim 9.62 \text{ ps}$. En otras palabras, la velocidad efectiva de traspaso a través de la estructura aumenta con el número de períodos. Este aumento de la velocidad efectiva es equivalente al régimen 2 mencionado en el trabajo original de Hartman [8]. En el cuadro interior de la Fig. 3.10 se muestra un detalle del tiempo de transmisión para estructuras con pocos períodos. La línea punteada es una guía para indicar el tiempo de transmisión cuando se alcanza el régimen de saturación. En estructuras

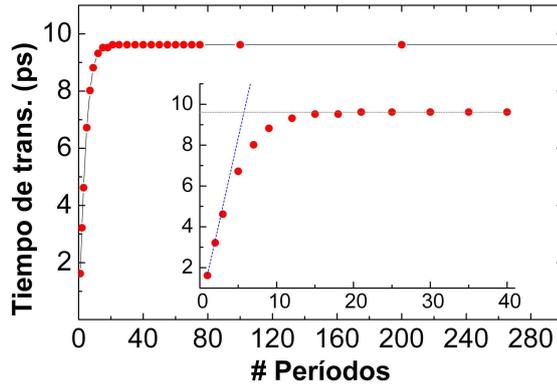


Figura 3.10: Tiempo de transmisión a través de un espejo de fonones en función del número de períodos que forman la estructura.

de hasta 300 períodos no se observó ningún cambio en este tiempo de transmisión.

Los dos parámetros más importantes que determinan la reflectividad de un dado mini-gap en un BR son la relación de espesores, y el contraste de impedancias acústicas de los materiales que forman la estructura. En la Fig. 3.11 se comparan los tiempos de transmisión en función del número de períodos de un BR formado por bicapas de: 1) GaAs/AlAs ($3\lambda/4, \lambda/4$), con círculos rojos; 2) GaAs/AlAs ($5\lambda/6, \lambda/6$), con cuadrados negros; 3) GaAs^{- ρ} /AlAs ($3\lambda/4, \lambda/4$), con triángulos verdes, y 4) GaAs^{+ ρ} /AlAs ($3\lambda/4, \lambda/4$), con triángulos azules, donde + ρ (- ρ) indica que la densidad del GaAs fue multiplicada por un factor 1.5 (0.9). Las estructuras se encuentran diseñadas con ZC[1] centrado en 20.0 cm^{-1} .

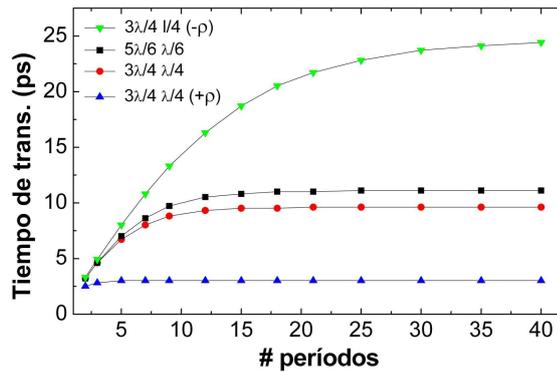


Figura 3.11: Comparación del tiempo de transmisión a través de un espejo de fonones en función del número de períodos que forman la estructura para cuatro estructuras con contrastes de impedancias acústicas y relaciones de espesores diferentes.

De la Fig. 3.11 se puede observar que el tiempo de transmisión τ_s , cuando se alcanza el régimen de saturación, aumenta tanto al disminuir el contraste de impedancias acústicas como al alejarse de las relaciones óptimas de espesores. Es decir que τ_s aumenta cuando disminuyen las características de reflectividad de la estructura. Al igual que en el caso fotónico, no resulta evidente que el tiempo de transmisión disminuye al aumentar la re-

flectividad; sin embargo debe recordarse que el efecto Hartman se basa en el “filtrado” de la señal transmitida, y que cuanto más ancho es el minigap acústico, más eficiente es este proceso. Comparando las estructuras GaAs/AlAs y GaAs^{-ρ}/AlAs, ambas con una relación de espesores ($3\lambda/4, \lambda/4$), se puede notar que el número de períodos en el que se alcanza τ_s varía con los parámetros de la estructura.

Para ninguno de los casos estudiados se observó que el tiempo de transmisión sea mayor que el tiempo t_{ef} . Por otro lado, se verificó que con menos de 20 períodos ya es posible observar la independencia del tiempo de transmisión a través de una superred GaAs/AlAs, evidenciando el efecto Hartman. Sin embargo, es conveniente tener en cuenta que la dificultad principal para la realización de los experimentos de transmisión en el stop-band son las bajas señales con las que se trabaja.

3.2. Transductores basados en superredes y cavidades

Los experimentos clásicos de transmisión requieren la utilización de un generador y un detector adaptados a las bandas frecuenciales que se quieren estudiar. En óptica, se cuenta con una enorme diversidad de fuentes de luz tanto discretas como continuas, coherentes (láseres) e incoherentes (lámparas) y una variedad de instrumentos que permiten detectar y resolver espectralmente señales de luz en los rangos IR-NIR-Vis-UV. En acústica, la transducción piezoeléctrica es el mecanismo usual de generación y detección; sin embargo se encuentra limitado a frecuencias menores a 100 GHz. Existen tres características fundamentales que son importantes en transductores para aplicaciones en nanofonónica: la coherencia, la monocromaticidad y la gama frecuencial que pueden cubrir.

En estudios de transporte térmico se han utilizado técnicas de generación basadas en pulsos de calor, generando fonones incoherentes y con una distribución espectral ancha, y se han usado bolómetros superconductores como detectores [95]. Las junturas túnel superconductoras [96, 97], por otro lado, son fuentes de fonones monocromáticos, pero incoherentes. En estudios ya relacionados con nanofonónica, la utilización de transductores metálicos para la generación y detección de fonones acústicos coherentes [14] resultó una solución eficiente para la realización de experimentos de transporte acústico con frecuencias en el rango sub-THz, pero encuentra dos limitaciones: son espectralmente anchos, y se encuentran limitados a frecuencias menores a ~ 250 GHz. El uso de pozos cuánticos como generadores constituye una técnica alternativa [77, 88, 98] que permite tener el transductor integrado en la misma estructura que se quiere estudiar. Sin embargo, al ser estructuras localizadas en el espacio, también resultan en transductores de banda ancha. Finalmente, el uso de superredes como generadores y detectores [79, 82, 99–101] presenta la ventaja de que estas estructuras son selectivas en frecuencia, y que sus bandas características están determinadas por el ancho de su período.

La propagación de fonones acústicos generados en una superred a través de un sustrato fue demostrada utilizando bolómetros superconductores como detectores [102]. Un trabajo posterior, utilizando una segunda superred como filtro de los fonones que alcanzaban al detector, resultó indicativo de la coherencia de los fonones generados [103]. Sin embargo, las características espectrales intrínsecas del generador de fonones quedaron ocultas por

las técnicas experimentales usadas. Existen algunos antecedentes de generación y detección desacopladas de fonones coherentes. Mizoguchi *et al.* [82] realizaron experimentos con láseres de dos colores, permitiendo desacoplar las regiones espaciales de transducción por efectos de absorción de la luz. Por otra parte, Trigo *et al.* [104] utilizaron dos superredes separadas por $1 \mu\text{m}$ de GaAs, y realizaron la generación en una superred y la detección en la otra.

En esta sección se presentarán los estudios de transductores de fonones acústicos longitudinales del rango GHz-THz basados en superredes y nanocavidades acústicas. El análisis tanto de generadores como de detectores requiere, en primer lugar desacoplar las regiones de generación y detección; y en segundo lugar, combinar un generador (detector) discreto con un detector (generador) de banda ancha, para identificar las características espectrales propias de cada dispositivo de manera independiente. Usando la geometría de transmisión presentada en la sección anterior se pueden separar espacialmente las regiones de generación y detección. Combinando un transductor de banda ancha basado en una película delgada de Al de un lado del sustrato, con un transductor cuasimonocromático (superred -SR- o nanocavidad -NC-) del otro lado, se obtiene un sistema que permite caracterizar los transductores basados en SR y NC, y a la vez caracterizar las películas de Al. Todas las muestras estudiadas en la presente sección fueron crecidas por el grupo de A. Lemaître en el Laboratoire de Photonique et des Nanostructures, Centre National de la Recherche Scientifique, Marcoussis, Francia.

3.2.1. Generadores de fonones coherentes

Las superredes han sido previamente utilizadas como generadores de fonones coherentes de alta frecuencia [82, 102, 104]; sin embargo las características espectrales no están bien determinadas, o como en el caso del trabajo de Mizoguchi *et al.* [82], se requiere la utilización de dos colores para poder diferenciar espacialmente las regiones de generación y de detección.

El objetivo de este apartado es caracterizar las SR y NC como generadores de fonones acústicos coherentes. Como se mencionó anteriormente, en primer lugar se desacoplan las regiones de generación y detección, utilizando la geometría de transmisión de fonones. Dado que tanto SR como NC son generadores de frecuencias discretas, se utiliza una película delgada de aluminio que actúa como detector de banda ancha, y permite el estudio de las características propias del generador (SR o NC) ubicado del otro lado del sustrato.

Se estudiarán tres muestras: SR100², NC100, y NC200. En la Fig. 3.12 se muestra un esquema general de las estructuras utilizadas en esta sección, junto con la geometría de medición. En este caso, el pulso pump incide directamente sobre el dispositivo, que actuará como generador coherente de fonones, y el probe incide sobre la película de 30 nm de Al que actuará como detector. En los resultados presentados en este apartado la detección se realizó en configuración de reflectometría, es decir, que se midió la parte real de la reflectividad resuelta en tiempo.

En la Fig. 3.13 se muestra la parte real de la reflectividad resuelta en tiempo medida en

²La estructura de GaAs/AlAs de SR100 es idéntica a la de BR100 estudiada en la sección anterior.

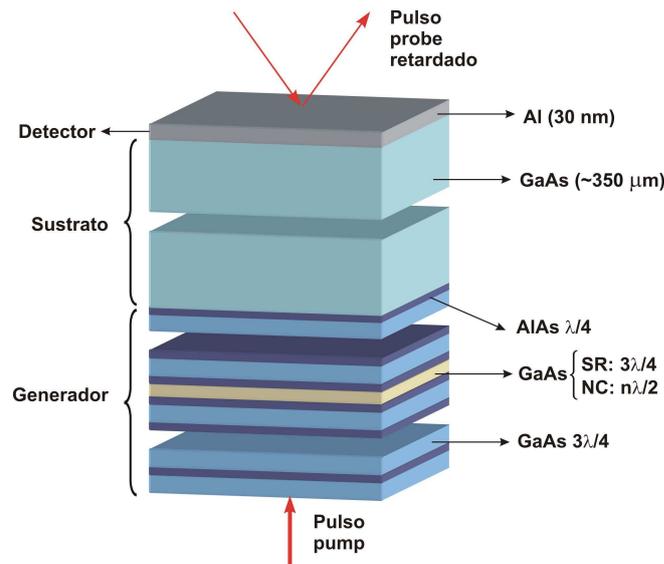


Figura 3.12: Esquema de una muestra en configuración de generación. El pulso pump incide sobre la muestra, generando fonones acústicos coherentes que se transmiten a través del sustrato. El probe incide sobre la película delgada de Al del otro lado del sustrato detectando los cambios de reflectividad del metal debido a la presencia de los fonones.

la muestra NC200 con una longitud de onda $\lambda=750$ nm. En la señal no hay contribuciones ni electrónicas ni térmicas, ya que la generación se realiza del otro lado del sustrato ($\sim 350 \mu\text{m}$ de espesor). El cambio de reflectividad más importante se observa a 0.5 ns y corresponde a la llegada a la película de Al del pulso acústico generado en la nanocavidad. Las variaciones de reflectividad que se pueden distinguir a 0.4 y 1.5 ns corresponden a ecos de pulsos acústicos anteriores. En el cuadro interior de la Fig. 3.13 se encuentra el detalle de la derivada temporal de la señal de reflectividad resuelta en tiempo entre 0.6 y 0.8 ns. Se pueden observar claramente oscilaciones con un período de ~ 5 ps, es decir, de una frecuencia ~ 0.20 THz, coincidente con la frecuencia del modo confinado en ZC[1].

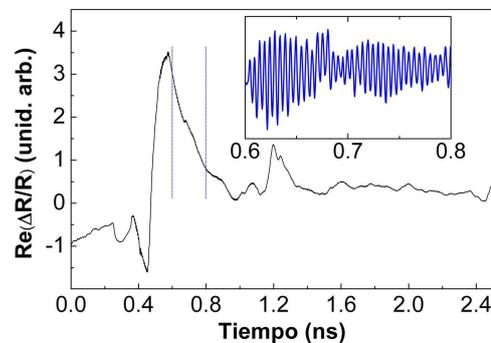


Figura 3.13: Reflectividad resuelta en tiempo medida en la muestra NC200 con una longitud de onda $\lambda=750$ nm. Cuadro interior: detalle de la derivada de la señal entre 0.6 y 0.8 ns.

En el capítulo anterior se mostró cómo, considerando un modelo de generación fo-

toelástico, en una superred infinita sólo se excitan fonones con $q = 0$. Los picos observados corresponden a fonones ubicados en los minigaps de centro de zona. Los modos de cavidad en el centro de zona son Raman activos en experimentos en geometría de FS. Teniendo en cuenta la analogía entre la ec. 2.62 que describe el espectro de generación y la ec. 2.43 que describe la sección eficaz de dispersión Raman en geometría FS, es previsible que los modos de cavidad en el centro de zona sean también activos en los procesos de generación. En la Fig. 3.14 se muestra la transformada de Fourier de la parte real de la reflectividad resuelta en tiempo para las muestras SR100 (izquierda) y NC100 (derecha). En la parte superior de la figura se incluyen las relaciones de dispersión correspondientes a los arreglos periódicos de cada estructura. Los espectros fueron medidos con una potencia de 200 mW y una longitud de onda $\lambda=750$ nm. El espectro de la izquierda está caracterizado por la presencia de un único pico intenso, y oscilaciones a ambos lados. El pico está asociado al modo $q = 0$ de baja frecuencia en ZC[1]. El espectro de la derecha presenta tres picos principales. El más importante de ellos se localiza a 0.10 THz y corresponde al modo confinado en la nanocavidad. Los otros dos modos están asociados a excitaciones con $q = 0$ localizadas principalmente en los espejos acústicos que forman la estructura.

Resulta interesante comparar el espectro de generación de la muestra SR100 (Fig. 3.14) con el espectro de generación-detección de la muestra SR1000 (Fig. 2.14). A pesar de la diferencia en las frecuencias características, ambas estructuras son superredes que responden a las mismas reglas de selección para los procesos de generación y detección. En el espectro de generación de la muestra SR100 sólo se observa un único pico, con $q = 0$. Por otra parte, en el experimento con pump y probe del mismo lado (o equivalentemente generación y detección en la superred) en la muestra SR1000 se pueden distinguir cuatro picos, tres de ellos con $q = 2k$ y uno con $q = 0$. Estos últimos resultados están en total acuerdo con el modelo de generación presentado en la Sec. 2.4.1.

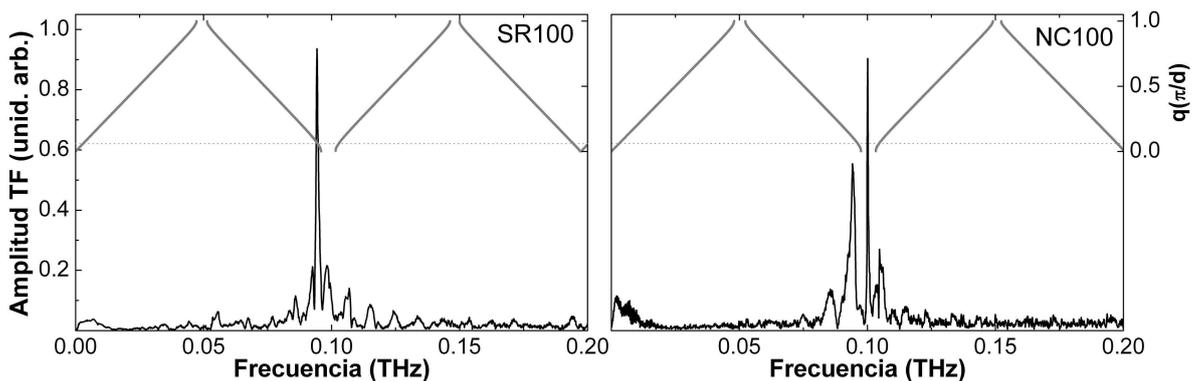


Figura 3.14: Transformada de Fourier de la reflectividad resuelta en tiempo en configuración de generación para las muestras SR100 (izquierda). En la parte superior (curva gris) se incluye la relación de dispersión para facilitar la identificación de los picos. La línea punteada horizontal indica $q = 2k$. Los datos de la muestra SR100 fueron medidos por A. Huynh y B. Perrin.

En la Fig. 3.15 se muestra la transformada de Fourier de la parte real de la reflectividad resuelta en tiempo para la muestra NC200. El espectro fue medido con una longitud de

onda $\lambda=790$ nm y una potencia de 170 mW. En la parte superior (curva gris) se incluye la relación de dispersión para facilitar la identificación de los picos. En el espectro se pueden observar tres picos a ~ 0.20 THz, y una señal continua decreciente por debajo de los 0.05 THz. Salvo por el corrimiento en energía, el aspecto general del espectro es muy similar al de la muestra NC100. El pico más intenso corresponde al modo de cavidad confinado en ZC[1], en esta muestra ubicado a 0.20 THz. Se observa un pico adicional a ~ 0.17 THz que puede asociarse a efectos de tamaño finito de la muestra.

De manera similar, es posible generar fonones utilizando una superred con ZC[1] centrado en 0.20 THz, y en este caso se observará sólo el pico de baja frecuencia con $q = 0$, al igual que en el caso de la muestra SR100. Reduciendo aún más el período de la muestra es posible aumentar la energía de los fonones que se generan, basta recordar que la energía de ZC[1] es inversamente proporcional al espesor del período de la superred.

Se ha observado que en la muestra SR1000 hay señales a frecuencias tan altas como 1.00 THz (ver Figs 2.13 y 2.14). Sin embargo, se han realizado experimentos en geometría de generación con una superred con ZC[1] ubicado a 0.40 THz, tanto en configuración de reflectometría como utilizando el interferómetro de Sagnac, y en ningún caso se observó una señal distinguible del ruido de fondo. La ausencia de fonones se atribuye a un problema de eficiencia en el detector metálico, y no a una limitación del mecanismo de generación. Este corte a ~ 0.25 THz en el espectro también fue observado en la sección anterior cuando se estudió la dinámica de fonones en dispositivos simples. Entre las posibles razones de la aparición de esta limitación en el espectro de detección se pueden mencionar: 1) absorción acústica en la película metálica, 2) calidad de la superficie, y 3) calidad y pureza de las películas delgadas de Al. Sin embargo, no debe considerarse este límite como intrínseco de la película delgada: existen evidencias de detección de fonones acústicos coherentes de hasta 0.60 THz en experimentos de transmisión de fonones usando películas delgadas de Al como transductores, y trabajando con *spots* de 1-3 μm para el probe [105].

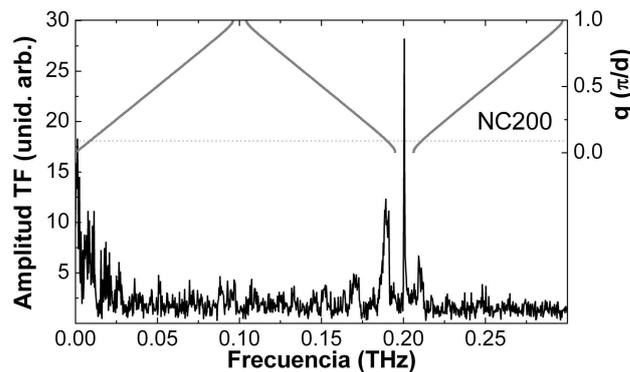


Figura 3.15: Transformada de Fourier de la reflectividad resuelta en tiempo para la muestra NC200. El espectro fue medido con una longitud de onda $\lambda=790$ nm. En la parte superior (curva gris) se incluye la relación de dispersión para facilitar la identificación de los picos. La línea punteada horizontal indica $q = 2k$.

Con el fin de estudiar la dinámica de los fonones acústicos generados en la cavidad NC200 se analizó la señal temporal mostrada en la Fig. 3.13. En la Fig. 3.16 se mues-

transformadas de Fourier parciales tomando ventanas temporales de 250 ps, con un espaciado de 50 ps entre dos espectros consecutivos. El tiempo indicado a la derecha corresponde al origen de cada ventana temporal. Con línea gruesa roja se indica el espectro que presenta la mayor intensidad. En el mismo pueden observarse una serie de picos intensos y oscilaciones concentrados alrededor de 0.20 THz. Los espectros en líneas negra y azul presentan un único pico centrado a 0.20 THz. Se puede notar que las fuertes oscilaciones desaparecen rápidamente, y que la señal asociada al modo de cavidad permanece por tiempos más largos en la señal detectada. Esto implica que los fonones generados en la cavidad tienen una vida media larga dentro de la estructura, y que se transfieren por efecto túnel hacia el sustrato a través del espejo inferior. El ancho medido del modo de cavidad es de 0.52 GHz, correspondiente a una vida media de 1.06 ns.

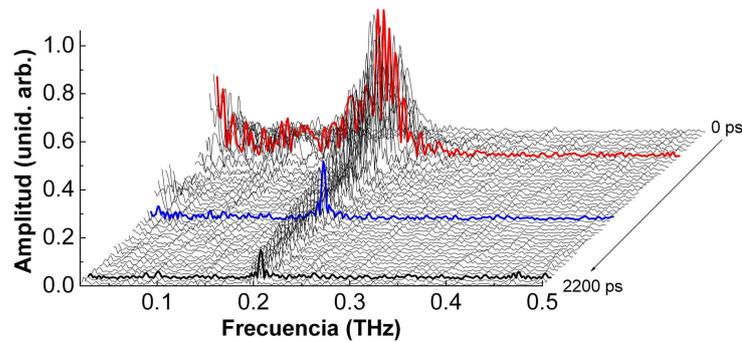


Figura 3.16: Transformadas de Fourier parciales de la señal temporal correspondiente a la muestra NC200 en geometría de generación. El tiempo a la derecha indica el origen de las ventanas temporales. Las curvas fueron calculadas con intervalos de 50 ps.

3.2.2. Detectores cuasimonocromáticos de fonones coherentes

En este apartado se estudiarán las características de superredes y nanocavidades como detectores de fonones coherentes. Ambos tipos de dispositivos presentan espectros de detección discretos. Para su caracterización, se separa espacialmente la región de detección (en la SR o NC) de la región de generación. Esta se realiza del otro lado del sustrato, y con un transductor de banda ancha (película delgada de Al), para permitir el estudio de las características propias de los detectores.

Se estudiarán cuatro muestras: NC200, y 3 superredes GaAs/AlAs ($3\lambda/4$, $\lambda/4$) con ZC[1] en 200, 400 y 600 GHz (SR200, SR400 y SR600 respectivamente). Las muestras SR200, SR400 y SR600 tienen 40, 80 y 120 períodos respectivamente, todas con un espesor total aproximado de $1 \mu\text{m}$. En la Fig. 3.17 se describe un esquema general de las muestras y geometría de detección utilizadas. Al igual que en los experimentos de generación, se requiere una película delgada de 30 nm de Al que actúe como transductor del lado del sustrato. En este caso, el pulso pump incide sobre la película delgada, que actuará como generador de fonones, y la NC o la SR actuará como el detector. Debido a efectos no lineales durante la propagación del pulso de hipersonido a través del sustrato se obtiene un espectro

fuertemente modificado, con componentes de alta frecuencia [92, 106]. El probe incide desde el lado de la muestra, interaccionando directamente con el dispositivo de hipersonido. De esta manera, la generación y la detección se encuentran desacopladas. La conversión de frecuencias en el sustrato permitirá el estudio del proceso de detección de fonones de alta frecuencia, sin la limitación observada cuando se utiliza una película de Al como detector.

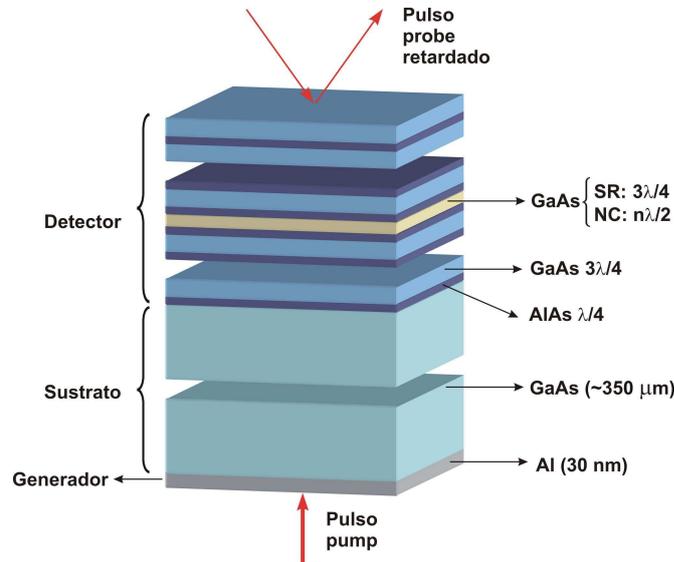


Figura 3.17: Esquema de una muestra en configuración de detección. El pulso pump incide sobre una película delgada de Al del lado del sustrato, y los fonones generados son detectados del otro lado por la muestra completa.

En la Fig. 3.18 se muestra la reflectividad resuelta en tiempo medida en la muestra SR200 con una longitud de onda $\lambda=750$ nm. Se pueden distinguir oscilaciones de baja frecuencia a lo largo de toda la ventana temporal mostrada. Estas oscilaciones corresponden al modo Brillouin. Además, en la parte central de la señal, entre 0.22 y 0.66 ns, se pueden observar oscilaciones de alta frecuencia (ver cuadro interior) detectadas en la SR. El pulso probe no es totalmente absorbido en el espesor del dispositivo, y consecuentemente interactúa con el sustrato, contribuyendo a la señal Brillouin antes de que el pulso de sonido entre a la muestra (0-0.22 ns) y después de que el pulso salga de la misma (0.66-1.50 ns).

Como se indicó en la ec. 2.94, la detección en una superred será sensible a fonones acústicos con $q = 2k$, donde k es el vector de onda de la luz. De esta manera, utilizando una superred como detector, se espera observar en el espectro un pico del modo Brillouin, y una serie de dobletes correspondientes a la intersección de la relación de dispersión replegada con el valor $q = 2k$.

En la Fig. 3.19 se muestra la TF de la reflectividad resuelta en tiempo para las muestras SR200 (izquierda) y NC200 (derecha). Los experimentos fueron realizados con una longitud de onda $\lambda=750$ nm. En la parte superior de la figura se incluye la relación de dispersión de una superred GaAs/AlAs ($3\lambda/4, \lambda/4$) con ZC[1] centrado en 0.20 THz. Para el período de estas estructuras el vector de onda $q = 2k$ se ubica prácticamente en el centro de la minizona de Brillouin. El espectro de la izquierda fue medido con una potencia de 400 mW en el

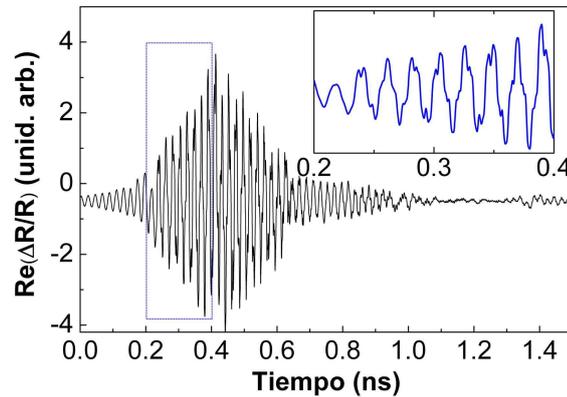


Figura 3.18: Reflectividad resuelta en tiempo de la muestra SR200. En el cuadro se muestra un detalle de la señal entre 0.2 y 0.4 ns. donde se pueden distinguir componentes de alta y baja frecuencia.

pump. Se pueden distinguir tres picos intensos y dos picos más tenues. El pico a ~ 50 GHz corresponde al modo Brillouin, originado por la detección tanto en la SR como en parte del sustrato. El resto de los picos, ubicados a ~ 0.15 , ~ 0.25 , ~ 0.35 y ~ 0.45 THz, corresponden a señales únicamente originadas en la SR y sus frecuencias están determinadas por el vector de onda de la luz k ($k = 2q$) y el período de la superred que determina el repliegamiento de la relación de dispersión. La intensidad relativa de los mismos está dada por el espectro de fonones incidentes en el dispositivo, y por las reglas de selección que permiten ver modos con una determinada simetría. El espectro mostrado en el panel de la derecha de la Fig. 3.19 fue medido con una potencia de 560 mW en el pump. En él se pueden observar cuatro conjuntos de picos ubicados a ~ 0.05 , ~ 0.15 , ~ 0.25 , y ~ 0.35 THz. El origen de estas señales es similar al de la muestra SR200. Los picos alrededor de 0.05 THz corresponden al modo Brillouin, detectado tanto en la muestra como en el sustrato, mientras que el resto está asociado a $q = 2k$ como en el caso de la SR. Los grupos de picos son generados por efectos de tamaño finito, y por interferencias entre las contribuciones de los dos espejos que forman la cavidad. Asimismo, se pueden distinguir dos picos tenues muy finos a 0.20 y 0.30 THz (indicados con círculos rojos), correspondientes a modos confinados de cavidad. La detección de estos fonones podría estar asociada bien a una reflexión del probe en la interfaz muestra/sustrato, o bien a un efecto de resonancia del láser con una transición electrónica en la superred.

Como se vio anteriormente las frecuencias detectables por una superred están determinadas principalmente por el período de la estructura. En la Fig. 3.20 se muestra la transformada de Fourier de la reflectividad resuelta en tiempo para la muestra SR200 en un rango de frecuencias extendido hasta 0.90 THz. Entre 0.50 y 0.90 THz se muestra la señal multiplicada por factor 10 con el fin de identificar los picos más tenues. Al igual que en la Fig. 3.19, se puede observar la presencia del pico asociado al modo Brillouin, y de una serie de dobletes correspondientes a los modos $q = 2k$ que se extienden hasta frecuencias de 0.85 THz. La intensidad relativa de estos picos está principalmente determinada por dos factores: 1) la intensidad del espectro incidente, que a su vez está determinado por la

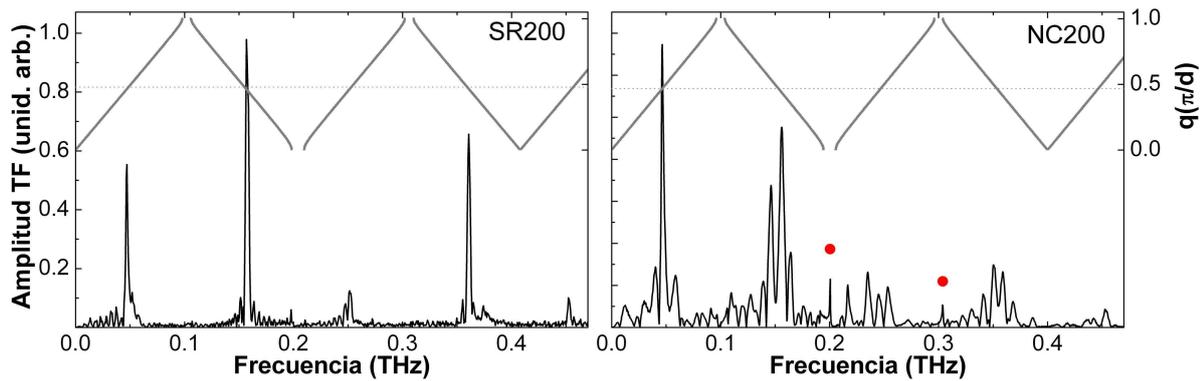


Figura 3.19: Transformada de Fourier de la reflectividad resuelta en tiempo para las muestras SR200 (izquierda) y NC200 (derecha). En la parte superior (curva gris) se incluye la relación de dispersión para facilitar la identificación de los picos. La línea punteada indica $q = 2k$.

potencia de excitación del pump, y por los efectos de propagación no-lineal en el sustrato; y 2) las reglas de simetría, que en el centro (borde) de zona permiten observar uno solo de los dos picos que forman los dobletes. Lejos del centro (borde) de zona, estas reglas se relajan, y permiten observar ambos picos, con distinta intensidad. A 0.20 y 0.60 THz se distinguen dos picos que están asociados a modos con $q = 0$. La observación de estos modos de centro de zona no responde a la regla $q = 2k$, y podría explicarse si se asume una reflexión del probe en la interfaz muestra/sustrato, o un efecto de resonancia con uno de los niveles electrónicos de la superred.

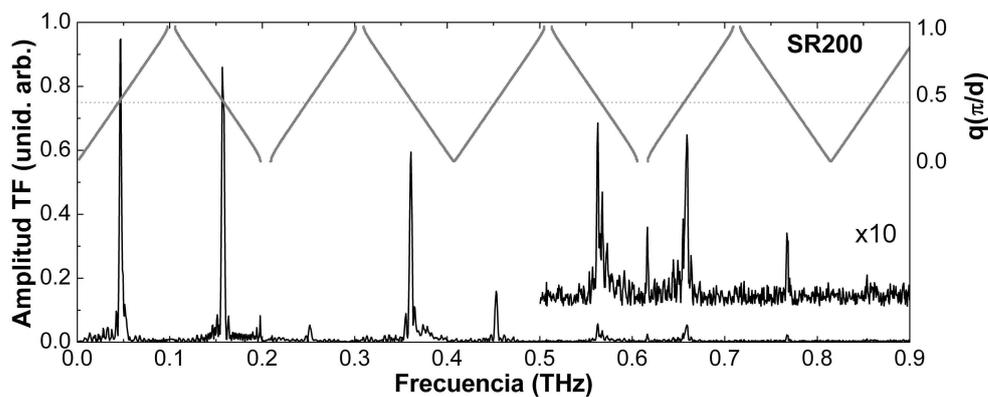


Figura 3.20: Transformada de Fourier de la reflectividad resuelta en tiempo para la muestra SR200. El espectro fue medido con una longitud de onda $\lambda=750$ nm. En la parte superior (curva gris) se incluye la relación de dispersión para facilitar la identificación de los picos. La línea punteada indica $q = 2k$. Notar que a diferencia de lo que ocurre con la generación de fonones en SR, se obtienen señales de hasta 0.90 THz.

Modificando el período de la estructura es posible cambiar la relación de dispersión y consecuentemente la posición de los minigaps acústicos. En el caso de la detección con una superred, modificar el período de la estructura permite cambiar la posición de los

modos $q = 2k$ en que el dispositivo es sensible. En la Fig. 3.21 se muestra la transformada de Fourier de la parte real de la reflectividad resuelta en tiempo para la muestra SR400, medido con la longitud de onda $\lambda=770$ nm, en un rango de frecuencias extendido hasta 1.00 THz. Para el período de estas estructuras el vector de onda $q = 2k$ se ubica entre el centro y el borde de la minizona de Brillouin. En el espectro se pueden observar cinco picos, uno a ~ 0.05 THz, correspondiente al modo Brillouin, y cuatro modos con $q = 2k$. Entre 0.60 y 1.00 THz, la señal ha sido multiplicada por un factor 10 para facilitar la observación de los modos. En este caso, a diferencia de lo que sucedía con la muestra SR200 y simplemente debido a la ubicación de $q = 2k$ en la zona de Brillouin, los picos se encuentran agrupados en dobletes alrededor de la energía de los minigaps en centro de zona (0.40 y 0.80 THz). Asimismo, es posible observar un pequeño pico a 0.40 THz correspondiente al modo $q = 0$ de la banda de menor frecuencia de ZC[1]. Es importante notar que los cuatro picos se encuentran suficientemente separados como para ser usados como detectores monocromáticos de fonones acústicos longitudinales.

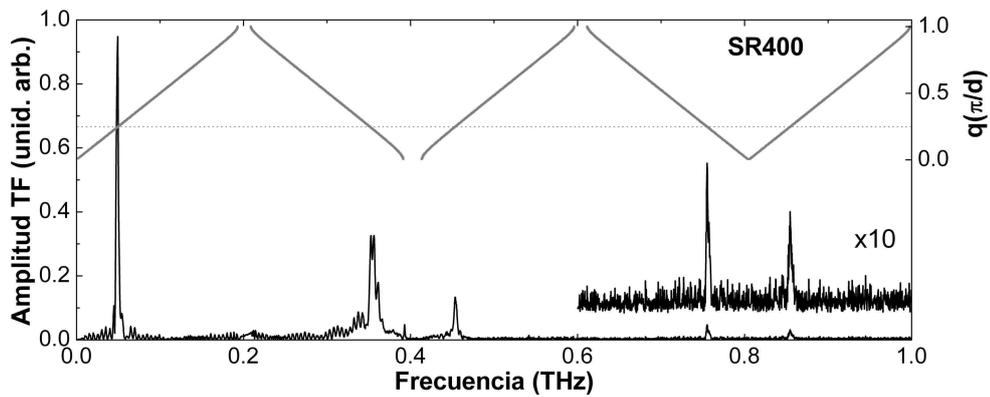


Figura 3.21: Transformada de Fourier de la reflectividad resuelta en tiempo para la muestra SR400. El espectro fue medido con una longitud de onda $\lambda=770$ nm. En la parte superior (curva gris) se incluye la relación de dispersión para facilitar la identificación de los picos. La línea punteada indica $q = 2k$.

Disminuyendo aún más el período de la superred es posible aumentar tanto la frecuencia característica de detección de los picos asociados a ZC[1], como así también el rango de frecuencias en que el dispositivo es insensible, es decir, aislar espectralmente aún más los picos de detección. En la Fig. 3.22 se muestra la transformada de Fourier de la parte real de la reflectividad resuelta en tiempo para la muestra SR600, medida con una longitud de onda $\lambda=755$ nm, en un rango de frecuencias extendido hasta 1.4 THz. Como se verá más adelante, la posición relativa del láser respecto de las transiciones electrónicas de la SR será uno de los factores determinantes de la sensibilidad del sistema. Para el período de estas estructuras el vector de onda $q = 2k$ (indicado con una línea de puntos horizontal) se ubica prácticamente en el centro de zona de Brillouin. En el espectro se pueden observar cinco picos, uno a ~ 0.05 THz, correspondiente al modo Brillouin, y cuatro modos con $q = 2k$. Para frecuencias mayores a 1.00 THz, la señal ha sido multiplicada por un factor 50 para facilitar la observación de los picos de ultra-alta frecuencia. Entre 0.10 y 1.10 THz

el espectro está formado únicamente por dos picos bien definidos alrededor de 0.60 THz, y separados aproximadamente por 0.10 THz. Otra característica importante de este espectro es la presencia de dos modos alrededor de 1.20 THz. Si bien la señal es débil, los picos son claramente identificables, permitiendo realizar una detección cuasimonocromática por encima de 1.00 THz. Asimismo, cabe señalar que la presencia de estos picos implica que fonones acústicos longitudinales de ultra-altas frecuencias pueden ser generados coherentemente por una película delgada de Al combinada con los efectos de propagación no-lineal a través de un sustrato de GaAs (001).

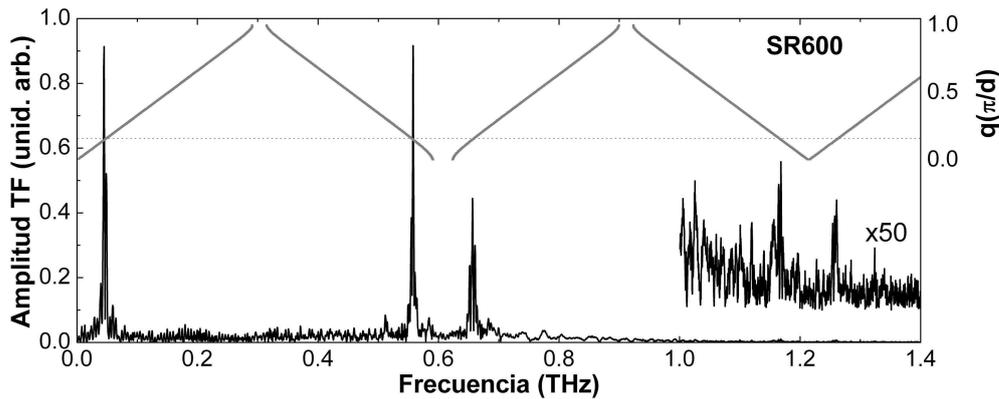


Figura 3.22: Transformada de Fourier de la reflectividad resuelta en tiempo para la muestra SR600. El espectro fue medido con una longitud de onda $\lambda=755$ nm. En la parte superior (curva gris) se incluye la relación de dispersión para facilitar la identificación de los picos. La línea punteada indica $q = 2k$.

Las transformadas de Fourier parciales de la señal correspondiente a la muestra SR200 (Fig. 3.20) se muestran en la Fig. 3.23. Se tomaron ventanas temporales de 250 ps, y los espectros fueron calculados con intervalos de 20 ps. El tiempo indicado a la derecha corresponde al origen de cada ventana temporal. Se puede notar que el modo Brillouin se detecta desde el primer espectro, mientras que los modos replegados son detectados solo cuando los fonones están atravesando el dispositivo. La curva con línea gruesa roja corresponde a un espectro donde se detecta principalmente el modo Brillouin (en el sustrato); la línea gruesa azul corresponde al momento en donde la señal del pulso acústico es máxima, es decir, cuando el pulso acústico llega a la interfaz muestra/aire. En este espectro se observa también el máximo del modo Brillouin, y la presencia de todos los picos de alta frecuencia. Finalmente la línea gruesa negra corresponde a un instante en donde el pulso acústico está saliendo de la muestra, y por lo tanto la señal es nuevamente dominada por el modo Brillouin. Como se indicó anteriormente, la presencia de una señal de alta frecuencia originada en el replegamiento de bandas es una indicación certera de que los fonones están transitando por la muestra.

En la Fig. 3.24 se muestran transformadas de Fourier parciales de la señal temporal correspondiente a la muestra NC200 (Fig. 3.19). Se tomaron ventanas temporales de 250 ps, y los espectros fueron calculados con intervalos de 20 ps. El tiempo indicado a la derecha corresponde al origen de cada ventana temporal. Nuevamente la curva roja indica un

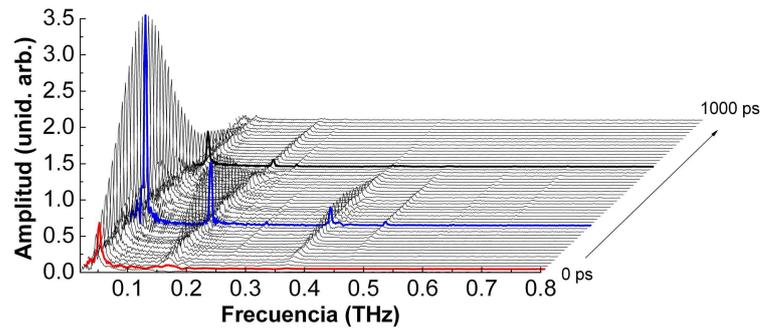


Figura 3.23: Transformadas de Fourier parciales de la señal temporal correspondiente a la muestra SR200 (Fig. 3.20). El tiempo a la derecha indica el origen de las ventanas temporales. Las curvas fueron calculadas con intervalos de 20 ps.

espectro en el que la detección se realiza en el sustrato antes de la llegada del pulso a la muestra; la azul corresponde a un espectro en el que la detección se realiza en el momento en que la señal temporal es máxima -y los fonones están transitando por la nanocavidad-; y la negra corresponde a un instante posterior al pasaje del pulso acústico por la muestra. Es claro que las señales de alta frecuencia se encuentran concentradas en una ventana temporal. Por otro lado, la flecha roja indica la posición del modo de cavidad a 0.20 THz. Cabe destacar que el tiempo de decaimiento de esta señal es mucho más grande que el del resto de los picos en el espectro de detección. La presencia de esta componente frecuencial por tiempos largos es un indicativo directo de que los fonones son confinados en la nanocavidad y que se encuentran modulando las propiedades ópticas de la misma.

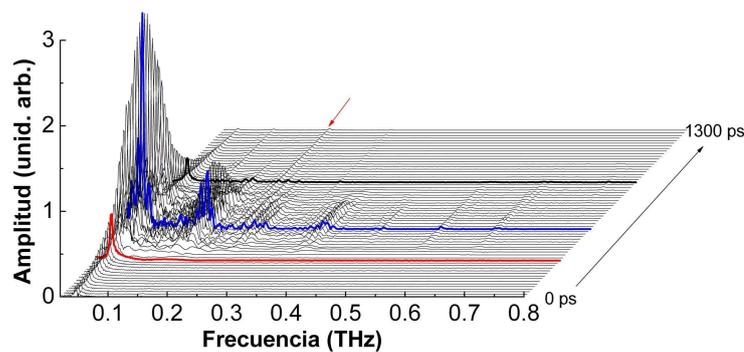


Figura 3.24: Transformadas de Fourier parciales de la señal temporal correspondiente a la muestra NC200 (Fig. 3.19). El tiempo a la derecha indica el origen de las ventanas temporales. Las curvas fueron calculadas con intervalos de 20 ps.

Además, se estudió la dependencia de las características de detección de una superred con la energía del láser utilizado. En la Fig. 3.25 se pueden observar los espectros de detección medidos sobre la muestra SR400 en función de la longitud de onda del láser utilizado, manteniendo la potencia del pump constante. Por debajo de 790 nm no se esperan cambios significativos en la respuesta del aluminio como generador, por lo que la dependencia con la longitud de onda estará dada principalmente por la SR. En los espectros se distinguen

cuatro picos principales, y oscilaciones débiles debidas a efectos de tamaño finito. El pico asociado al modo Brillouin a ~ 0.05 THz presenta una intensidad que es prácticamente independiente de la longitud de onda entre 775 y 790 nm. Los tres picos alrededor de 0.40 THz están asociados a ZC[1]. Los picos exteriores corresponden a fonones con $q = 2k$, y el pico central a un modo de $q = 0$. La relación de intensidades de estos tres picos varía con la longitud de onda, y es un indicativo de la condición resonante con un nivel electrónico de la superred. La curva roja (775 nm) es la que presenta la mayor intensidad en los picos de alta frecuencia. Calculando los niveles electrónicos de la superred, se obtiene que la energía a la transición e1-lh1 para esta estructura es de 1.597 eV (776.2 nm), indicando que la resonancia observada se origina en esa transición. Cabe destacar que para longitudes de onda menores a 760 nm la señal es dos órdenes de magnitud menos intensa que a 775 nm, y que por encima de 800 nm la respuesta del Al resulta fuertemente dependiente de la longitud de onda.

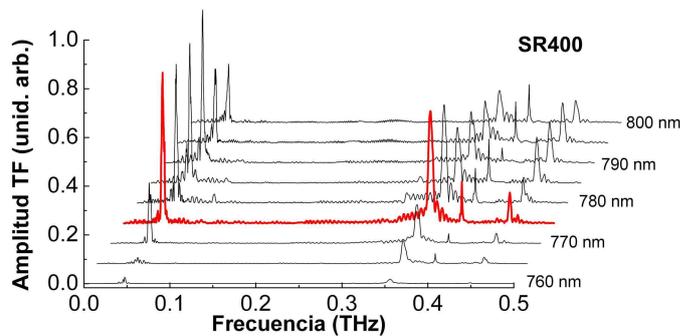


Figura 3.25: Espectros de detección de la muestra SR400 en función de la longitud de onda del láser.

La intensidad de los picos en un espectro de detección está dada por la función de sensibilidad del detector a esa frecuencia, y por la intensidad del espectro acústico incidente. Se ha visto cómo es posible cambiar la posición espectral de estos picos cambiando el período de la estructura, y cómo seleccionando adecuadamente la longitud de onda se puede aumentar la sensibilidad del sistema. Por otra parte, la excitación de una película metálica produce pulsos acústicos por efecto fototérmico que, al propagarse en un sustrato cristalino, están sometidos a los efectos de la dispersión, la absorción acústica, la difracción y la no-linealidad. La anarmonicidad en las fuerzas interatómicas es el origen de la no-linealidad, y por lo tanto de los efectos de conversión de frecuencias. La distorsión de un pulso durante la propagación a través de un sustrato debida a la dispersión del sonido y a la no-linealidad puede ser descrita por la ecuación de Korteweg-de Vries unidimensional [106, 107], considerando que la difracción es despreciable. Trabajando a bajas temperaturas, los efectos de la absorción acústica se vuelven despreciables. Variando la potencia del pump y dejando inalterados el resto de los parámetros de medición, es posible evidenciar los efectos de la propagación en el sustrato. La Fig. 3.26 muestra las transformadas de Fourier de la reflectividad resuelta en tiempo en geometría de detección de la muestra SR600 en función de la potencia de pump. Los espectros están medidos con intervalos de potencia de 10 mW.

En todos los casos se observan el modo Brillouin a ~ 0.05 THz, y dos picos alrededor de 0.60 THz con $q = 2k$. Se puede notar que la intensidad de los espectros no varía linealmente con la potencia de excitación; basta observar el modo Brillouin que presenta oscilaciones en su intensidad. Asimismo cabe destacar que la relación de intensidades entre los tres picos identificados también varía con la potencia del pump. En la curva azul se puede ver que el modo Brillouin presenta el pico más intenso del espectro. En la curva roja, el pico Brillouin prácticamente desaparece, siendo el pico a ~ 0.55 THz el más intenso. Por otra parte, en la curva negra los picos a 0.05 y 0.55 THz presentan intensidades similares. Finalmente para bajas potencias, es claro que los fonones de altas frecuencias no se generan al atravesar el sustrato, y los espectros están caracterizados por un único modo a 0.05 THz.

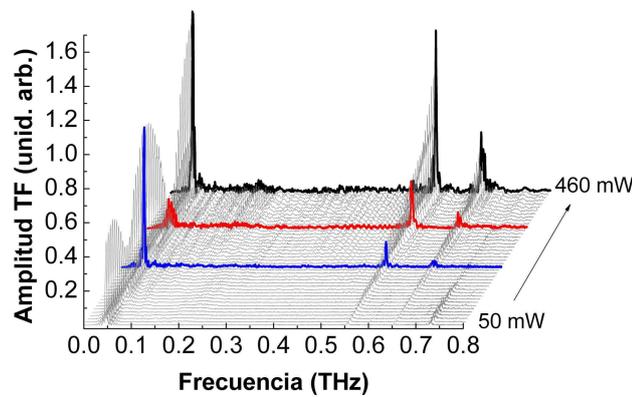


Figura 3.26: Espectros de detección de la muestra SR400 en función de la potencia del pump. Las curvas fueron medidas con intervalos de 10 mW

3.3. Generación coherente en nanocavidades híbridas metal-óxido

Luego de la propuesta original de Purcell [28], probada en el dominio de las microondas, se despertó un gran interés en la posibilidad de cambiar las propiedades de emisión espontánea de luz y el espectro de átomos o excitones a través de la modificación de la densidad de estados fotónicos. Esto se ha logrado ya sea cambiando los medios dieléctricos cerca de los emisores [29, 30], o más fundamentalmente, introduciendo los emisores en una microcavidad óptica [31]. Dependiendo de la superposición del espectro del emisor con los máximos o mínimos de la densidad de estados fotónica modificada, la emisión puede ser amplificada [28, 32] o inhibida [33]. Se aplicaron ideas similares para modificar otros procesos de interacción de la radiación con la materia, por ejemplo, no-linealidades tipo Kerr [108], emisión estimulada de luz en gotas [109], y dispersión inelástica de luz [24, 34, 110]. La búsqueda de efectos Purcell grandes [111] es el punto central en la investigación de la amplificación de luz por emisión estimulada de radiación sin umbral [112]. Como se vió previamente, una película delgada metálica emite un espectro ancho de fonones dado por la transformada de Fourier del perfil de excitación. En esta sección se demuestra que el espectro de generación de fonones coherentes de una película delgada metálica excitada

de manera impulsiva, puede ser inhibida o amplificada insertando la capa metálica en una nanocavidad acústica.

Existen antecedentes previos en la utilización de superredes semiconductoras [113] y metálicas [57] combinadas con películas delgadas, sin embargo en ninguno de estos trabajos se analizan los efectos del cambio en la densidad de estados, ni las propiedades de generación modificadas de la película delgada por la presencia de la superred. Teniendo en cuenta el paralelismo existente entre cavidades acústicas y ópticas, el objetivo es usar y extender conceptos de la fotónica para entender lo que ocurre en el caso fonónico.

En esta sección se presentan nanocavidades acústicas híbridas metal-óxido y se estudia la modificación de las propiedades de transducción fotón-fonón de una película delgada metálica por la presencia de un BR formado por SrTiO₃/BaTiO₃.

3.3.1. Descripción de las muestras

Las nanocavidades híbridas están formadas por un espaciador acústico y un BR. El espaciador consiste en una película delgada metálica de ~ 30 nm. Para estudiar los efectos de la modificación de la densidad de estados acústicos en el metal y separar los posibles fenómenos presentes, los espejos acústicos no deben acoplarse con el pulso de luz y por lo tanto no deberían intervenir en el proceso de generación de fonones coherentes (a diferencia de lo que ocurre con las muestras formadas por semiconductores previamente estudiadas), a excepción de la modificación de las condiciones de contorno acústicas relacionadas con el transductor de Ni.

Las heteroestructuras de óxidos piezoeléctricos como el BaTiO₃ y el SrTiO₃ poseen un rango de impedancias acústicas que permiten superar el contraste obtenido con semiconductores como GaAs y AlAs. Pueden presentar un carácter fuertemente piezoeléctrico, permitiendo, por ejemplo, la modulación eléctrica de la posición de un modo de cavidad. Recientemente, se observó ferroelectricidad a temperatura ambiente en películas delgadas de SrTiO₃ bajo una deformación biaxial de $\sim 1\%$ [114–116], y a bajas temperaturas bajo una deformación axial del orden de 0.1%. Estas deformaciones podrían alcanzarse con frecuencias del rango GHz-THz a través de la generación coherente de fonones acústicos [80]. Dado que la interacción de luz y sonido es fuertemente amplificada en materiales ferro- y piezoeléctricos, resulta sumamente interesante la incorporación de este tipo de materiales en aplicaciones de nanofonónica. El avance en las estrategias y técnicas de crecimiento epitaxial ha permitido obtener películas delgadas y multicapas de estos materiales con interfaces planas, y espesores controlados comparables a las estructuras obtenidas con GaAs/AlAs [117].

Además de las motivaciones antes mencionadas para utilizar SrTiO₃ y BaTiO₃ como materiales para aplicaciones de nanofonónica, estos materiales tienen sus gaps electrónicos en el rango de los 350 nm, por lo que resultan totalmente transparentes para la longitud de onda del láser utilizado (750 nm). En la Fig. 3.27 (izquierda) se puede ver un esquema de la muestra. La nanocavidad híbrida tiene un espejo inferior de 10 períodos de SrTiO₃/BaTiO₃ de 20.31/6.46 nm, estos espesores corresponden a 52 y 16 celdas unidad, respectivamente. El stop-band ZC[1] se encuentra centrado a una frecuencia de ~ 130 GHz. El BR fue crecido

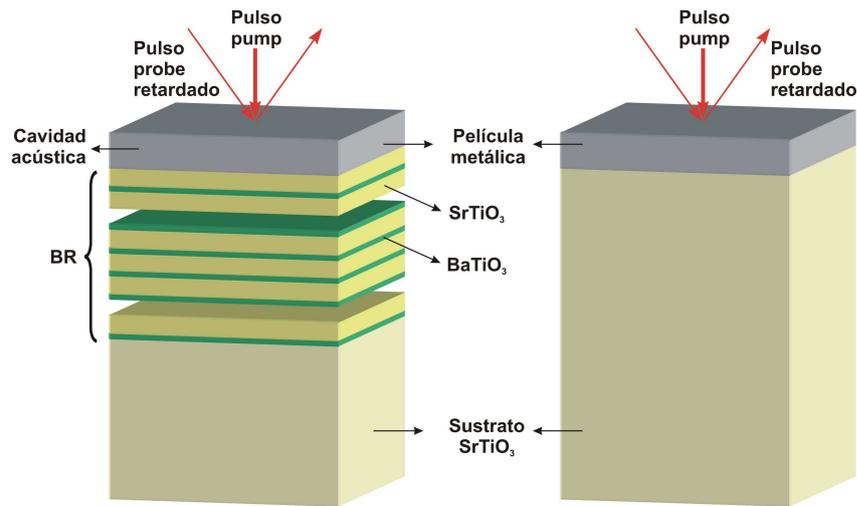


Figura 3.27: Esquema de las muestras híbridas y configuración de medición. Pump y probe inciden desde el mismo lado sobre la película delgada metálica. Izquierda: nanocavidad híbrida metal/óxido, formada por la película metálica y un BR de $\text{SrTiO}_3/\text{BaTiO}_3$. Derecha: muestra de referencia formada por una película delgada de un metal depositada sobre un sustrato de SrTiO_3 .

sobre un sustrato de SrTiO_3 por MBE, con interfaces planas al nivel atómico.

El contraste de impedancias acústicas entre el SrTiO_3 y el BaTiO_3 es relativamente grande (0.75) comparado con el contraste entre el GaAs y el AlAs (0.84). La reflectividad de un espejo de tan sólo 10 períodos es de 0.98 %, siendo necesarios 17 períodos en una muestra basada en GaAs/AlAs para obtener la misma reflectividad. Además, el alto contraste de impedancias acústicas implica un ancho del stop-band dos veces más grande que en el caso de los semiconductores, resultando menos crítico el control del espesor del espaciador metálico evaporado sobre el BR de $\text{SrTiO}_3/\text{BaTiO}_3$ para que funcione como una cavidad. Como metal para el espaciador de la nanocavidad híbrida se eligió el Ni, por su impedancia acústica cercana a la del SrTiO_3 (53.5 y 40.9, respectivamente). Esto permite un correcto acoplamiento acústico entre la película delgada de metal y la estructura de óxidos. Dado que los fonones con frecuencias de GHz no pueden propagarse en el aire, la interfaz aire/muestra puede describirse con una condición de contorno de deformación cero. Esto implica, idealmente, una reflectividad del 100 % para los pulsos acústicos, y por lo tanto, no se requiere un BR superior en la nanocavidad.

Por otra parte, se evaporó una película de Ni sobre un sustrato de SrTiO_3 (ver Fig. 3.27, derecha) que permite comparar los espectros de generación de una película delgada metálica con y sin confinamiento acústico. Se preparó un segundo par de muestras, idéntico al primero en el que la capa de Ni fue reemplazada por 30 nm de Al, el mismo metal utilizado en las dos secciones anteriores como transductor. La impedancia acústica del Al (15.9) es mucho menor que la del SrTiO_3 . De esta manera, el conjunto de cuatro muestras estudiadas esta formado por: una nanocavidad híbrida con Ni (NC[Ni]), una nanocavidad híbrida con Al (NC[Al]), una película delgada de Ni evaporada sobre SrTiO_3 (Sus[Ni]) y una película delgada de Al evaporada sobre SrTiO_3 (Sus[Al]).

Las estructuras epitaxiales de SrTiO_3 y el BaTiO_3 estudiadas en la presente sección fueron crecidas por A. Soukiassian, en el grupo de D. Schlom del Materials Research Institute, Universidad de Pennsylvania, Estados Unidos de América. Las evaporaciones de Ni y Al fueron realizadas por R. Gohier en el Institut des NanoSciences de Paris, Francia.

3.3.2. Modos resonantes en nanocavidades híbridas

En el panel superior de la Fig. 3.28 se muestra el desplazamiento de superficie calculado usando el método de las matrices de transferencia descrito en el Cap. 2, considerando un pulso blanco incidiendo sobre la estructura NC[Ni] desde el sustrato [118]. El cálculo no incluye ningún mecanismo de atenuación acústica, que podría causar el ensanchamiento del pico correspondiente al modo de cavidad observado a ~ 130 GHz. Dentro de un determinado rango de frecuencias, el modo de cavidad puede ser sintonizado cambiando el espesor de la capa metálica sin modificar la estructura del espejo [119]. En el panel inferior de la Fig. 3.28 se puede observar el desplazamiento de la superficie en función del espesor de la capa de Ni y de la frecuencia del hipersonido considerado, donde las regiones más oscuras indican máximos en el desplazamiento de la superficie. La región angosta negra que cubre el rango desde 140 GHz para un espesor de Ni de ~ 23 nm, hasta ~ 115 GHz para 43 nm, muestra la posición del modo confinado de cavidad. El ancho de esta curva es un indicativo del cambio de *finesse* (es decir, la vida media de los fonones dentro de la cavidad) con el apartamiento del modo del centro del stop-band. Debido a la alta calidad del espejo utilizado, es posible variar el espesor de la capa de Ni de 33 nm en $\pm 30\%$ sin perder el modo confinado, ni generar un ensanchamiento significativo del mismo.

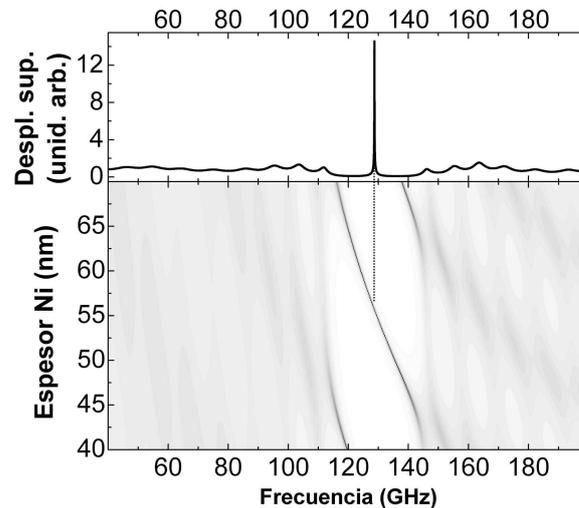


Figura 3.28: Panel superior: desplazamiento de la superficie en la nanocavidad híbrida para una energía de 128.7 GHz. Panel inferior: Desplazamiento de la superficie en función del espesor de la capa de Ni y de la frecuencia de los fonones acústicos. Regiones oscuras indican mayores amplitudes de desplazamiento.

En la muestra NC[Ni], el modo observado podría confundirse con un modo de superficie (Sec. 1.2.3); sin embargo, el modo resonante en la nanocavidad híbrida es cualitativamente

diferente. En superredes semi-infinitas con una superficie libre, pueden existir modos localizados cerca de la superficie si la primera capa tiene menor impedancia acústica que la segunda, es decir, $Z_1 < Z_2$. Las frecuencias de estos modos localizados (ω_L) son las soluciones de [57, 100]:

$$Z_1 \operatorname{tg}(\omega_L d_1 / v_1) + Z_2 \operatorname{tg}(\omega_L d_2 / v_2) = 0, \quad (3.2)$$

donde d_i y v_i son el espesor y la velocidad del sonido del material i , respectivamente. La longitud l de decaimiento de estos modos está dada por:

$$l = 1/\operatorname{Im}(q_L) = -d/\ln \left| \frac{\cos(\omega_L d_1 / v_1)}{\cos(\omega_L d_2 / v_2)} \right|. \quad (3.3)$$

En otras palabras, se tiene un modo localizado de superficie si el material que está en contacto con el aire es el de menor impedancia acústica, y su espesor es el mismo que el del resto de las capas del mismo material en el arreglo semi-infinito.

En cambio, en el caso de las nanocavidades híbridas, estas condiciones no se aplican. En primer lugar, el material que forma la capa superficial no es ninguno de los materiales que forman el BR. En el caso particular de la cavidad NC[Ni], el Ni tiene una impedancia acústica mayor que la de los materiales que forman el espejo de fonones. En segundo lugar, controlando el número de períodos que forman el espejo acústico es posible realizar una ingeniería de la transmisión hacia el sustrato. Por último, todas las propiedades discutidas en el marco de las cavidades híbridas del tipo NC[Ni] son aplicables al caso de una nanocavidad que incluya un BR superior. Y en todos los casos, eligiendo adecuadamente el espesor del metal es posible obtener un modo resonante.

3.3.3. Experimentos de generación coherente en muestras híbridas

Se realizaron experimentos de generación coherente de fonones acústicos en las cuatro muestras descritas anteriormente. Tanto el pump como el probe inciden del mismo lado de la muestra (ver Fig. 3.27). En todos los experimentos se utilizó una longitud de onda $\lambda=750$ nm, con una potencia en el pump de ~ 100 mW. Ambos pulsos fueron focalizados sobre la muestra en un spot de $\sim 50\mu\text{m}$ de diámetro. Las mediciones presentadas fueron realizadas en configuración de reflectometría, es decir que se midió la parte real de la variación de la reflectividad normalizada $\Delta r/r_0$, inducida en la capa metálica por la presencia de los fonones acústicos. Se realizaron mediciones con el interferómetro de Sagnac que permiten arribar a las mismas conclusiones presentadas al final de la presente sección.

En la Fig. 3.29 se muestran las señales medidas sobre Sus[Ni], NC[Ni] y NC[Al] (paneles a, b y c, respectivamente). Los paneles interiores muestran un detalle de los primeros 200 ps de las señales. La señal mostrada en el panel a, presenta una variación de reflectividad fuerte en $t=0$, y luego una serie de oscilaciones regulares con un período de 21 ps. Estas oscilaciones corresponden al modo Brillouin, y son originadas por la detección en el sustrato de SrTiO₃, debido a la transmisión no nula a través de la película delgada de Ni. Una señal temporal semejante se obtuvo con la muestra Sus[Al]. En el panel b, correspondiente a una nanocavidad híbrida, la reflectividad presenta una variación fuerte inicial, como en el caso

de la muestra Sus[Ni]. Se pueden distinguir claramente dos variaciones importantes que rompen la regularidad de la señal a ~ 40 y ~ 125 ps, y que tienen el aspecto característico de las señales producidas por un eco. Entre estos dos puntos se distinguen oscilaciones bien definidas con un período de ~ 8.6 ps. Después de la variación de reflectividad a los 125 ps, se pueden observar nuevamente oscilaciones, pero menos regulares. Luego de los primeros 300 ps se observan oscilaciones tenues, regulares, y con un período aproximado de 21 ps. El panel c corresponde a la nanocavidad con Al, el metal de baja impedancia acústica. La señal presenta un aspecto similar a la de la cavidad de Ni, de alta impedancia acústica. A $t=0$ se observa el cambio de reflectividad usual, seguido por una serie de picos de baja frecuencia hasta 40 ps. Entre 40 y 105 ps aparecen oscilaciones regulares con un período de ~ 7.6 ps. A partir de 200 ps la señal es prácticamente plana, sin ningún tipo de oscilación definida.

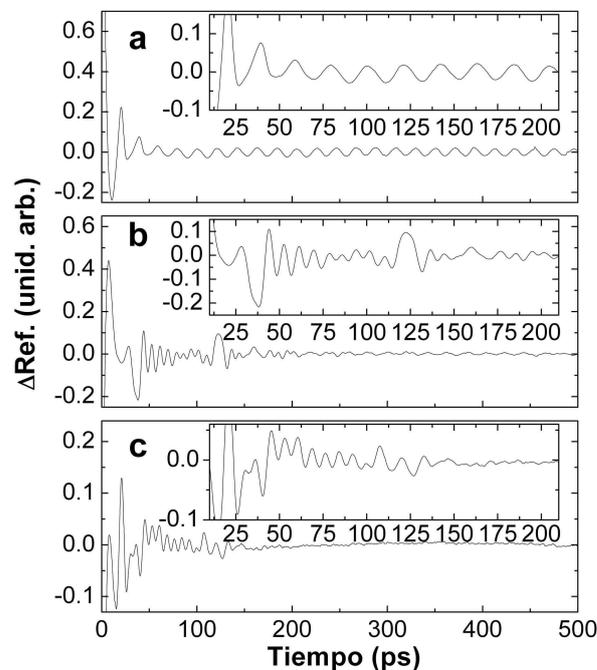


Figura 3.29: Reflectividad resuelta en tiempo medida en las muestras híbridas Sus[Ni], NC[Ni], y NC[Al] (paneles a, b y c respectivamente). En los cuadros interiores se muestra un detalle de los primeros 200 ps de las señales.

Es evidente que en los casos de las nanocavidades NC[Al] y NC[Ni], las señales son diferentes a la de la muestra Sus[Ni]. En las curvas correspondientes a las nanocavidades se pueden identificar intervalos temporales en donde se observan oscilaciones de alta frecuencia prácticamente monocromáticas, mientras que en el caso de la muestra Sus[Ni] sólo se puede distinguir la señal detectada en el sustrato, sin ninguna componente adicional de alta frecuencia.

En los paneles de la derecha de la Fig. 3.30 se muestran los mapas de intensidad de la variación de reflectividad en función del tiempo y de la frecuencia calculados mediante transformadas de Fourier con ventanas temporales de 85 ps para el caso de la película

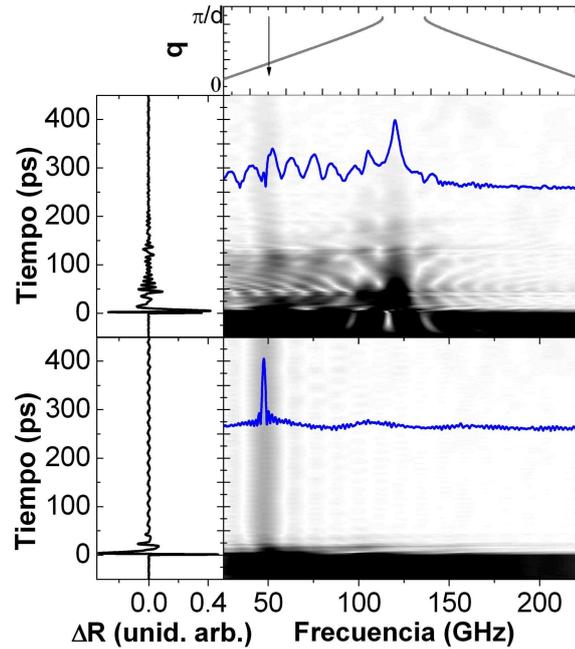


Figura 3.30: Los paneles de la izquierda muestran las señales temporales, los paneles de la derecha las transformadas de Fourier parciales en función del tiempo tomando ventanas de 85 ps. La transformada de Fourier completa se muestra en azul. Los paneles inferiores (superiores) corresponden a las mediciones realizadas sobre Sus[Ni] (NC[Ni]). Se presenta la relación de dispersión asociada a los BR para facilitar la identificación del stop-band. La flecha vertical indica la frecuencia del modo Brillouin.

de Ni, con y sin confinamiento acústico. En los paneles de la izquierda se pueden ver las derivadas de las trazas temporales de las mediciones de reflectividad resuelta en tiempo (véase Fig. 3.29). Las curvas azules corresponden a la transformada de Fourier realizada sobre la totalidad de la función temporal. El panel superior (inferior) corresponde a las mediciones realizadas sobre la muestra NC[Ni] (Sus[Ni]). En la parte superior de la figura se incluye la relación de dispersión de la estructura $\text{SrTiO}_3/\text{BaTiO}_3$ infinita asociada al BR para facilitar la identificación del stop-band. Con una flecha se indica la posición del modo Brillouin para la longitud de onda utilizada. Observando el mapa de intensidades de la muestra Sus[Ni] resulta evidente que las oscilaciones corresponden prácticamente sólo a la dispersión Brillouin de las ondas acústicas propagándose en el sustrato de SrTiO_3 , detectadas por la penetración del láser en el sustrato a través de la película delgada de Ni. Esta contribución es muy débil por ser la energía del láser (1.6518 eV, 750 nm) mucho menor que el gap de los óxidos (3.5397 eV, 350 nm), pero se obtienen señales medibles debido a que el volumen de sondeo es muy grande. La variación inicial observada durante los primeros 20 ps presenta un espectro ancho, que resulta apenas visible en la transformada de Fourier completa. Esta estructura de oscilaciones es generada esencialmente por el pulso acústico espectralmente ancho generado en la capa de Ni, que es transferido rápidamente al sustrato (~ 20 ps). El bajo contraste de impedancias acústicas entre el Ni y el SrTiO_3 facilita dicho proceso de transferencia de energía entre el generador y el sustrato. Tanto la señal

temporal, como la evolución de las componentes frecuenciales es cualitativamente diferente cuando se agrega el espejo de $\text{SrTiO}_3/\text{BaTiO}_3$ para formar la nanocavidad acústica, como se puede observar en los paneles superiores de la Fig. 3.30. A pesar de seguir observándose una componente Brillouin como en el caso de $\text{Sus}[\text{Ni}]$, el peso espectral de la señal se ha transferido hacia frecuencias más altas. La característica más distintiva es el pico ubicado aproximadamente a 125 GHz. Estas componentes frecuenciales se encuentran a lo largo de toda la señal temporal medida, y presentan una constante de decaimiento de ~ 100 ps. Esta frecuencia se corresponde con la de las oscilaciones monocromáticas observadas en la Fig. 3.29. Además de este pico, oscilaciones más débiles con frecuencias características en el rango 0-100 GHz se pueden observar durante los primeros 125 ps. Una vez más, es claro que los fonones de alta frecuencia están ligados a la presencia de la superred. Por otro lado, es importante notar que el pico intenso a ~ 125 GHz cae dentro del stop-band fonónico.

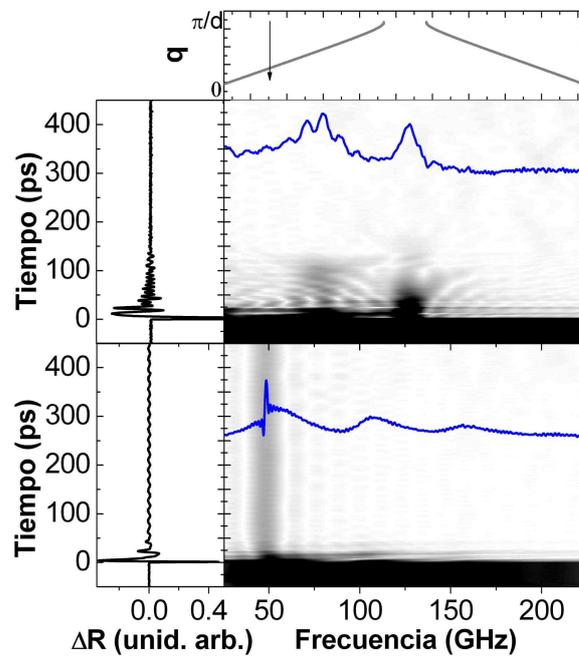


Figura 3.31: Los paneles de la izquierda muestran las señales temporales, los paneles de la derecha las transformadas de Fourier parciales en función del tiempo tomando ventanas de 85 ps. La transformada de Fourier completa se muestra en azul. Los paneles inferiores (superiores) corresponden a las mediciones realizadas sobre $\text{Sus}[\text{Al}]$ ($\text{NC}[\text{Al}]$). Se presenta la relación de dispersión asociada a los BR para facilitar la identificación del stop-band. La flecha vertical indica la frecuencia del modo Brillouin.

En la Fig. 3.31 se muestran las derivadas de las trazas temporales (izquierda) y la evolución temporal de las componentes frecuenciales (derecha) correspondientes a las muestras $\text{Sus}[\text{Al}]$ (abajo) y $\text{NC}[\text{Al}]$ (arriba). Las curvas azules corresponden a las transformadas de Fourier realizadas sobre todo el rango temporal mostrado. En la parte superior de la figura se incluye la relación de dispersión de la estructura infinita $\text{SrTiO}_3/\text{BaTiO}_3$ asociada al BR. Con una flecha se indica la frecuencia del modo Brillouin. Todo el comportamiento es similar al observado en la Fig. 3.30 para el Ni. La evolución temporal de la señal

obtenida en la muestra Sus[Al] es semejante a la obtenida con la muestra Sus[Ni]: un único pico correspondiente al modo Brillouin, cuyas componentes frecuenciales se encuentran presentes a lo largo de toda la traza temporal, y componentes de alta frecuencia que desaparecen rápidamente. La evolución temporal medida en la muestra NC[Al] presenta un pico ancho prácticamente centrado en el stop-band del BR. Las oscilaciones anchas en el costado de bajas energías tienen una intensidad comparable a la del pico principal. En la evolución temporal se puede observar que durante los primeros 20 ps se produce una fuerte variación en la intensidad de todas las frecuencias, en particular, de las frecuencias menores a 100 GHz, tiempo en el cual los fonones son transferidos al sustrato. Luego de los primeros 125 ps se observa que todas las frecuencias están fuertemente atenuadas. En particular se observa que las contribuciones de los fonones confinados en la cavidad prácticamente desaparecen. Teniendo en cuenta el ancho del modo confinado, y que la transmisión acústica a través del BR es la misma que en el caso de la nanocavidad NC[Ni], se deduce que los fenómenos de atenuación son más importantes en el Al que en el Ni. Se pueden citar nuevamente como posibles causas de esta atenuación la calidad de la película delgada, las condiciones superficiales (oxidación y rugosidad), y la absorción acústica en el metal.

3.3.4. Efecto Purcell en fonones acústicos

Para evaluar la respuesta acústica de la estructura se calcularon los autoestados del sistema considerando un modelo continuo con condiciones de superficie libre en la interfaz aire/muestra, y usando valores publicados de las densidades y velocidades del sonido de todos los materiales [120]. El espectro generado es calculado según el mecanismo descrito en la Sec. 2.4.1, asumiendo que en un instante inicial una impulsión ultra-rápida determina la condición inicial de deformación que está totalmente localizada en la capa metálica. El perfil espacial se expresa entonces como una combinación lineal de los autoestados acústicos. La evolución temporal de estos estados se obtiene a través de la dependencia temporal con la energía a través de $\exp(-i\omega t)$.

Para simular la dependencia temporal del cambio en la reflectividad inducido a través de un mecanismo fotoelástico en la capa metálica, se consideran los métodos descritos en la Sec. 2.4.1. Asignando el pico a ~ 125 GHz de la Fig. 3.30 al modo confinado de cavidad, y teniendo en cuenta los resultados de la Fig. 3.28, se determinó que el espesor real de la capa de Ni es de 38.5 nm.

En la Fig. 3.32 (abajo) se muestra el espectro calculado de fonones acústicos generado por la película delgada de Ni evaporada directamente sobre el sustrato de SrTiO₃ (línea gruesa gris), y por la nanocavidad híbrida NC[Ni] (línea fina negra). Para comparar se incluyen las respectivas curvas experimentales (arriba). Debe tenerse en cuenta que, de acuerdo a los cálculos (no mostrados en la figura) el espectro detectado es prácticamente idéntico al espectro generado. Es decir que las características de detección no modifican el espectro de $\Delta r/r_0$, que representa, por lo tanto, esencialmente el espectro de generación.

De la Fig. 3.32 es importante resaltar que: i) El espectro generado por la película delgada de Ni no confinada (Sus[Ni]), es ancho y no presenta prácticamente ninguna característica ni pico distintivo. Esencialmente corresponde a las componentes de Fourier de un

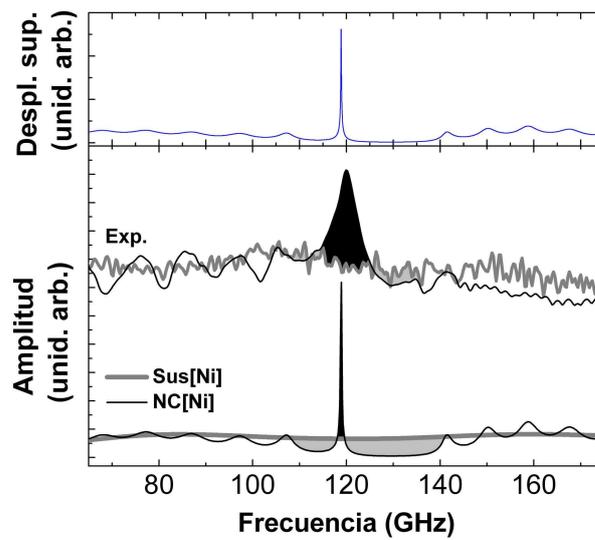


Figura 3.32: Panel inferior: abajo espectro calculado de generación de la película delgada de Ni depositada directamente sobre el sustrato de SrTiO_3 (línea gris gruesa), y de la nanocavidad híbrida metal-óxido (línea negra fina). Arriba, para comparación se muestran las correspondientes curvas experimentales. Las regiones sombreadas en gris (negro) indican inhibición (amplificación). Panel superior: dependencia en frecuencia del desplazamiento de superficie para la cavidad híbrida metal-óxido, que representa la densidad de estados local de modos acústicos.

pulso acústico espacialmente localizado en la región de la película delgada. ii) El espectro generado por la película metálica es cualitativamente modificado por la presencia del BR de $\text{SrTiO}_3/\text{BaTiO}_3$. La característica más notoria es la inhibición de la emisión dentro del stop-band (regiones grises), excepto en el modo de cavidad donde la generación es fuertemente amplificada (regiones negras). iii) Fuera del stop-band fonónico se observan oscilaciones en el espectro generado, que comparadas con el espectro de la capa de Ni sobre el sustrato también presentan regiones de amplificación e inhibición. Debe aclararse que con el fin de ajustar las posiciones de las oscilaciones se han modificado los espesores nominales de la muestra (o de manera equivalente las velocidades del sonido) en un 3%. iv) El acuerdo entre los datos experimentales y las simulaciones es muy bueno, salvo por un claro ensanchamiento del modo de cavidad y por la intensidad de los fonones de alta frecuencia fuertemente reducida. Esto puede deberse al decaimiento de los fonones por interacciones electrón-fonón en la capa de Ni, y por una reducción de la reflectividad en la interfaz metal/aire debida a la presencia de rugosidad y oxidación superficial del Ni [57, 121].

Con el fin de comprender el origen de las características del espectro generado, en el panel superior de la Fig. 3.32 se muestra el cálculo del desplazamiento de la superficie de la nanocavidad híbrida en función de la frecuencia. Esta curva refleja esencialmente la densidad local de estados acústicos [30, 122]. En particular, es importante notar que los modos acústicos son expulsados del minigap y concentrados en la frecuencia de resonancia de la cavidad y en los bordes del stop-band. Esta modificación de la densidad de estados acústicos es la que determina las energías a la que los fonones pueden ser emitidos por el

metal (amplificación) y a cuales no (inhibición).

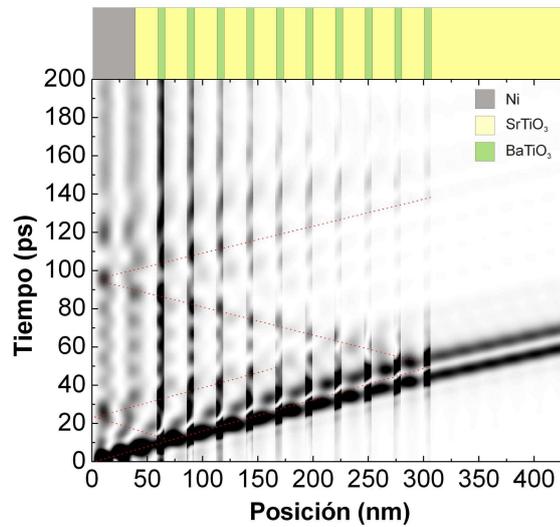


Figura 3.33: Evolución temporal de la deformación acústica en función de la posición para la cavidad híbrida NC[Ni]. Las regiones más oscuras corresponden a mayores intensidades. Se muestra un esquema de la estructura para facilitar la localización espacial de los distintos materiales.

El origen de las distintas contribuciones que forman las señales temporales mostradas en la Fig. 3.29 se puede estudiar analizando la evolución temporal del espectro generado dentro de la estructura de la cavidad híbrida. En la Fig. 3.33 se muestra la intensidad de la deformación en función de la posición y del tiempo. Las regiones más oscuras denotan mayores intensidades de desplazamiento. Para facilitar el análisis, se incluye un esquema de la muestra en la parte superior de la figura. De la evolución temporal se puede notar que: i) El tiempo de escape del pulso de fonones de la capa metálica luego de su creación es de aproximadamente 20 ps. Esta ventana temporal determina las primeras variaciones intensas de reflectividad tanto en la película delgada sobre SrTiO₃ como en la cavidad híbrida. ii) El establecimiento de una onda estacionaria en la capa de Ni resulta evidente luego de este transitorio. Las oscilaciones observadas corresponden al modo de cavidad a ~ 120 GHz, que se observan claramente en las trazas temporales entre 40 y 125 ps. Notar que, debido al acuerdo entre las impedancias acústicas entre el Ni y el SrTiO₃ que forma la primer capa del BR, desde el punto de vista de la propagación acústica el espesor total del espaciador metálico y la primera capa de SrTiO₃ forman la cavidad acústica en la que se establece la onda estacionaria. El decaimiento de la intensidad del modo de cavidad se debe en parte a la transmisión por efecto túnel a través del espejo acústico, como se puede observar claramente en la Fig. 3.33, pero también al tiempo de vida medio de los fonones en la capa metálica, y a efectos de dispersión en la interfaz aire/muestra que no fueron tenidos en cuenta en las simulaciones. iii) Aproximadamente a 110 ps se observa un eco del pulso inicial proveniente de la última capa del espejo que alcanza nuevamente al espaciador de la cavidad. Este eco se evidencia en la señal temporal con variaciones de baja frecuencia que se suman a las oscilaciones del modo de cavidad. iv) Luego de este eco, sólo se observan

pequeñas oscilaciones debidas al modo confinado detectado en el espaciador, sumado a las oscilaciones Brillouin debidas a la penetración del láser en el BR y en el sustrato.

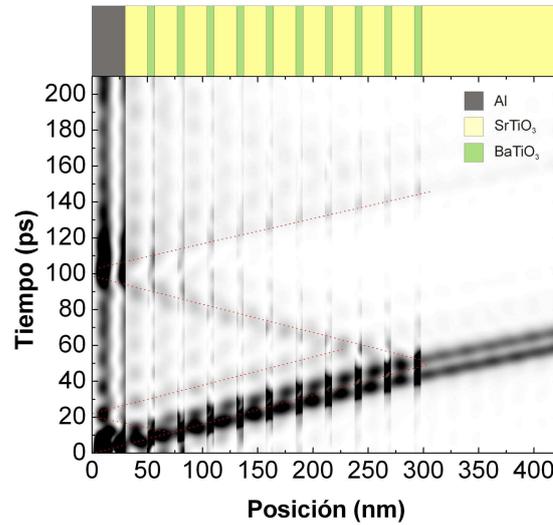


Figura 3.34: Evolución temporal de la deformación acústica en función de la posición para la cavidad híbrida NC[Al]. Las regiones más oscuras corresponden a mayores intensidades. Se muestra un esquema de la estructura para facilitar la localización espacial de los distintos materiales.

En la Fig. 3.34 se muestra la intensidad de la deformación en función de la posición y del tiempo para la nanocavidad híbrida NC[Al]. Al igual que en la Fig. 3.34, se incluye un esquema de la muestra en la parte superior, y las regiones más oscuras representan mayores intensidades de deformación. En el caso de la nanocavidad de Al, es importante observar que: i) Se puede distinguir un primer eco originado en la interfaz metal/óxido que llega a la superficie a ~ 20 ps. ii) Luego de este transitorio, se establece una onda estacionaria en la capa metálica, visible en todo el rango temporal. A diferencia de la cavidad NC[Ni], y debido al alto contraste de impedancias acústicas entre el Al y el SrTiO₃, la capa de Al sola es la que actúa como espaciador de la nanocavidad. iii) Las mayores intensidades se registran en la película metálica, también debido al alto contraste de impedancias acústicas con los materiales que forman el BR. iv) A aproximadamente 100 ps se observa la llegada a la superficie de un eco proveniente de la interfaz muestra/sustrato que cambia la regularidad del patrón de oscilaciones estacionario en el espaciador. v) Luego de este eco, en las simulaciones sólo se observa el modo estacionario presente en el espaciador, mientras que en la señal experimental no se distingue ninguna característica particular del ruido de fondo. En los espectros mostrados en la Fig. 3.31, las altas frecuencias posiblemente son atenuadas por absorción en el metal, y la penetración de la luz en la muestra a través del Al es mucho menor que en el Ni, disminuyendo de forma apreciable la contribución del modo Brillouin en la detección.

Como ya se ha mencionado en la Sec. 3.2.1, existen trabajos previos en los que se reporta la generación coherente de fonones acústicos longitudinales utilizando superredes de materiales semiconductores [79, 82, 101, 123]. La superred artificial actúa como un

transductor selectivo que acopla la luz con aquellos fonones cuya distribución espacial se superpone con la periodicidad de las capas excitadas electrónicamente. El resultado es que los fonones acústicos replegados de alta frecuencia pueden ser generados y detectados en este tipo de estructuras. El caso de las nanocavidades híbridas es fundamentalmente diferente. Como se indicó previamente, el SrTiO_3 y el BaTiO_3 tienen sus gaps electrónicos en el rango de los 350 nm, y por lo tanto son completamente transparentes para la longitud de onda del láser utilizado de 750 nm. Por lo tanto, la transducción entre luz e hipersonido se da únicamente en la película metálica y no en la superred. Modificando los grados de libertad fonónicos, a través de la incorporación del espejo de $\text{SrTiO}_3/\text{BaTiO}_3$ para formar una nanocavidad, se definen los fonones que son emitidos por el metal. En este sentido, el rol de la cavidad acústica puede ser comparado con el de las cavidades ópticas con pozos cuánticos integrados en su espaciador. En estos casos, la emisión de luz por recombinación de los excitones está fuertemente alterada por la densidad de estados fotónicos modificada, este es el denominado efecto Purcell. Las ideas presentadas con cavidades híbridas metal-óxido pueden extenderse al campo de los semiconductores. De hecho, como se mencionó previamente, es posible generar pulsos acústicos anchos usando pozos cuánticos de semiconductores. Usando nanocavidades, es posible realizar una ingeniería del espectro de emisión de dichos pozos.

3.4. Conclusiones

En este capítulo se estudiaron sistemas simples basados en cavidades y espejos de fonones acústicos. Se demostró que insertando una cavidad entre dos espejos de fonones se produce un pico de transmisión dentro de los stop-bands y que un paquete de ondas resonante con este pico es significativamente retardado cuando se transmite a través del dispositivo. Cuando el pulso se centra en el stop-band de un espejo de fonones, por el contrario, el pulso se vuelve supersónico, es decir, su velocidad se vuelve mayor que la de cualquiera de los materiales que conforman la estructura; demostrando el análogo del efecto Hartman para fonones acústicos longitudinales en el rango sub-THz.

Utilizando la geometría de transmisión, se estudió el uso de superredes y nanocavidades como generadores y detectores de fonones acústicos coherentes. Dado que el generador y el detector se encuentran en los lados opuestos de un sustrato, se demostró que los fonones son transferidos al mismo de manera eficiente, y que pueden propagarse a través de distancias mayores a 1 mm. Se demostró que combinando una película delgada de Al con los efectos no-lineales de propagación en el sustrato de GaAs es posible generar fonones coherentes de frecuencias tan altas como 1.30 THz, y que estos pueden ser detectados de manera selectiva usando superredes como transductores. La frecuencia de los fonones generados con una SR o una nanocavidad es independiente de la longitud de onda utilizada. Sin embargo, cuando estos dispositivos se utilizan como detectores, la regla de selección $q = 2k$ establece una dependencia con el láser utilizado. Tanto para generadores como para detectores es posible sintonizar la frecuencia cambiando el período de la estructura. Se ha visto también que existe una longitud de onda para la cual los detectores basados en SR se vuelven particularmente sensibles y se corresponde con las transiciones electrónicas de la superred.

Las películas delgadas metálicas son los transductores más usuales en experimentos y aplicaciones de acústica de picosegundos. Se han presentado las cavidades híbridas metal-óxido, formadas por un espejo de fonones de $\text{SrTiO}_3/\text{BaTiO}_3$ y un espaciador acústico metálico. Se ha demostrado que las características de generación y emisión de fonones longitudinales intrínsecas del transductor hacia el sustrato pueden ser modificadas fundamentalmente realizando una ingeniería de la densidad de estados acústicos, de una manera conceptualmente equivalente a la presentada originalmente por Purcell para microondas, e implementada con luz en años recientes. Estos resultados tienen implicancias en el desarrollo de fuentes de hipersonido coherente, y en el estudio de la amplificación de fonones y la implementación de SASERs en estructuras artificiales.

Capítulo 4

Dispositivos aperiódicos para fonones acústicos

En el presente capítulo se aborda el problema del diseño, optimización y caracterización de estructuras artificiales aperiódicas de medios elásticos inhomogéneos para aplicaciones específicas. Los filtros y espejos propuestos para hipersonido consisten en un arreglo intercalado de dos materiales de alta y baja impedancia acústica, respectivamente. Como en el caso de los filtros aperiódicos de interferencia óptica, su respuesta se basa en la interferencia de ondas reflejadas y transmitidas en cada una de las interfaces [13] de la estructura. Se mostrará que cambiando la distribución de espesores en un apilamiento es posible modificar la respuesta espectral de los dispositivos. Mediante un algoritmo de optimización multivariable, se pueden determinar cuáles son los espesores que optimizan a una determinada función de reflectividad.

Por otro lado, se pueden imaginar otras aplicaciones de estructuras formadas por arreglos no-periódicos, como la generación y la detección optimizadas de fonones acústicos, la ingeniería de pulsos de hipersonido, o el tratamiento de señales acústicas. Los avances realizados durante los últimos años en técnicas de crecimiento epitaxial permiten garantizar la calidad requerida tanto en las interfaces como en los espesores característicos para este tipo de dispositivos.

En la primera sección de este capítulo se plantea el problema de la optimización de filtros y espejos de fonones acústicos basados en multicapas aperiódicas de GaAs/AlAs, y se describen los métodos y algoritmos de optimización utilizados. En la Sec. 2 se presentan los resultados experimentales de la caracterización de dispositivos aperiódicos, a través de dispersión de rayos X, fotoluminiscencia y espectroscopía Raman. La Sec. 3 está dedicada a la caracterización acústica de filtros y espejos de hipersonido mediante experimentos de generación coherente de fonones con láseres ultra-rápidos. Finalmente, en la Sec. 4 se presentan las conclusiones de este capítulo.

4.1. Diseño y optimización de filtros y espejos para hipersono

La ingeniería de nuevos dispositivos para la manipulación y control de vibraciones acústicas en sólidos es uno de los problemas más importantes en el desarrollo de aplicaciones para nanofonónica. Se ha propuesto, basándose en tecnologías de la fotónica, que mediante el uso de multicapas aperiódicas es posible diseñar estructuras con curvas de reflectividad prácticamente arbitrarias. Sin embargo, determinar la distribución de espesores que corresponde a una función de reflectividad específica implica la utilización de algoritmos de optimización multivariable.

En esta sección se introducen los algoritmos y métodos de optimización multivariable utilizados para el diseño, análisis y optimización de filtros para fonones acústicos basados en multicapas aperiódicas. Asimismo, se presentan los resultados del diseño y optimización de dispositivos para fonones acústicos en el rango GHz-THz, que tienen un equivalente en el campo de la óptica. Diseños de dispositivos como espejos de banda ancha, filtros de borde, notch y de color se discutirán en esta sección para ilustrar los diferentes criterios de diseño de estructuras fonónicas complejas.

4.1.1. Espejo de banda ancha

Dado que muchos de los generadores de fonones acústicos son generadores blancos, un dispositivo que resultará elemental en aplicaciones de nanofonónica es un espejo de banda ancha. Es decir, un espejo cuya banda de alta reflectividad sea mucho mayor que el stop-band de un espejo periódico o superred.

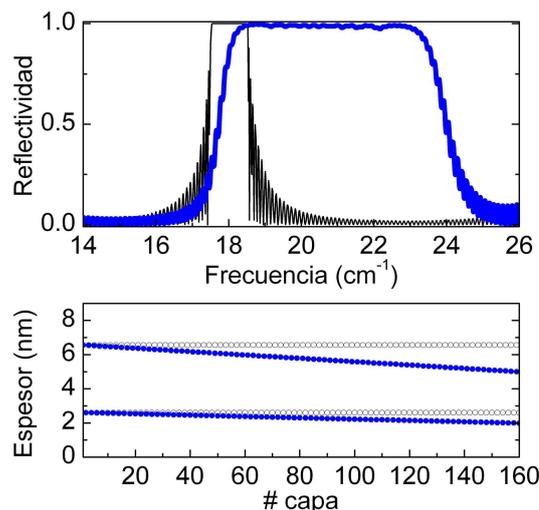


Figura 4.1: Panel superior: reflectividad acústica de una superred de 80 períodos de GaAs/AlAs (curva negra) y del arreglo correspondiente al espejo de banda ancha de 160 capas de los mismos materiales (curva azul). Panel inferior: comparación entre la distribución de los espesores de la superred (○) y del dispositivo optimizado (●).

Una superestructura basada en bicapas de GaAs/AlAs, con espesores que van dismi-

nuyendo de manera constante con el número de capa (0.3 % en el caso presentado), tiene asociada una banda de alta reflectividad mucho más grande que la de las estructuras periódicas con el mismo contraste de impedancias acústicas. En la Fig. 4.1 se muestra la reflectividad acústica calculada y los espesores de las capas correspondientes a un espejo de banda ancha formado por 160 capas. Con fines comparativos, se presenta la reflectividad acústica y distribución de espesores de un espejo periódico con el mismo número de capas. Deber notarse que la reflectividad del espejo de banda ancha está por encima del 97 % en la región espectral que se extiende entre 18.5 y 23.5 cm^{-1} , una banda de frecuencias 5 veces más grande que el stop-band de una estructura periódica con el mismo número de capas.

La respuesta del espejo de banda ancha es relativamente sencilla, y los parámetros que determinan sus características son fácilmente identificables: número de capas, materiales, y gradiente de espesores. A pesar de la importancia y adaptabilidad de este dispositivo, para la manipulación de fonones acústicos en aplicaciones de nanofonónica se requerirán dispositivos y filtros más complejos, por ejemplo, filtros de borde, notch y de color, por mencionar los filtros más utilizados en óptica. El diseño de estas estructuras no puede realizarse apilando estructuras periódicas o introduciendo un gradiente en los espesores como en el caso del espejo de banda ancha. El diseño de estos filtros complejos requiere resolver un problema inverso. A continuación se analizan algunas consideraciones sobre el problema del diseño de dispositivos acústicos basados en multicapas aperiódicas.

4.1.2. Optimización de multicapas aperiódicas

Un “problema inverso” consiste en la reconstrucción o diseño óptimo de un conjunto de parámetros en un sistema para alcanzar un estado deseado. El “problema directo” consiste en calcular el estado resultante dado un conjunto de parámetros. En el caso de la ingeniería de filtros para hipersonido, el conjunto de parámetros está dado por la distribución de espesores en una multicapa no-periódica, y el objetivo es alcanzar una determinada curva de reflectividad acústica en un rango espectral dado. Para resolver el problema inverso es necesario conocer una manera eficiente de resolver el problema directo asociado, que en este caso resulta ser el cálculo de la reflectividad dada la distribución de espesores en una estructura. Para calcular la reflectividad se utilizó el método de las matrices de transferencia descrito en la Sec. 2.1.

La variación de los espesores de cada una de las capas de una superred con el fin de obtener las respuestas espectrales buscadas supone un complejo problema de optimización multivariable. El problema de optimización a resolver queda definido por:

$$\min_{\vec{p} \in R^N} f(\vec{p}), \quad (4.1)$$

y la función objetivo f se define como:

$$f(\vec{p}) = \sum_n \|S_n - R_n(\vec{p})\|^2, \quad (4.2)$$

donde S es la curva que describe la reflectividad ideal del dispositivo buscado, R la reflectividad de la estructura a evaluar, \vec{p} es el vector de espesores que identifica una muestra y

el índice n identifica el punto en donde la evaluación es realizada.

Como se verá más adelante, en muchos casos es necesario contar con un diseño inicial o semilla que mantenga cierta similitud con el dispositivo buscado. El diseño de esta semilla puede implicar una o varias etapas de optimización previas como se ilustrará en la Sec. 4.1.5. Por otro lado, debe tenerse en cuenta que el problema de diseño puede no tener solución. Dada una estructura siempre es posible calcular su curva de reflectividad. Sin embargo, es posible plantear una curva de reflectividad deseada que no tenga asociada ninguna estructura formada por un arreglo de los materiales utilizados. Frecuentemente una superred será la primera semilla adecuada.

Como rutina de optimización se decidió utilizar un algoritmo de búsqueda directa basado en el propuesto por Nelder y Mead [124, 125], incorporando semillas apropiadas para aprovechar sus características de convergencia rápida. En esta sección se presentarán las características generales del método. En siguientes secciones se discutirán su implementación y las diferentes opciones al momento de seleccionar las semillas.

El método de optimización propuesto por Nelder y Mead (NM) [124], también conocido como downhill simplex [125], es un algoritmo de búsqueda directa que aprovecha la topología de la función objetivo. Utilizando semillas se hace posible encontrar soluciones en el entorno del punto propuesto, que bien puede ser un mínimo local o un mínimo absoluto. Los métodos de búsqueda directa no requieren el conocimiento de las derivadas ni implícita ni explícitamente. El algoritmo NM encuentra una nueva aproximación a la solución en cada paso con un mínimo número de evaluaciones de la función objetivo, y por lo tanto, con un reducido costo computacional.

Un simplex se define como la superficie determinada por $n + 1$ vértices en un espacio n -dimensional. Por ejemplo, tres puntos no colineales determinan un simplex en R^2 , cuatro puntos no coplanares determinan un simplex en R^3 , etc. En el algoritmo NM cada vértice de un simplex representa un conjunto de parámetros de la función objetivo. Este algoritmo opera moviendo y deformando un simplex n -dimensional a través de R^n reemplazando en cada iteración el vértice en donde la función objetivo toma su valor máximo. Cada dimensión corresponde a una variable a ser optimizada. En cada iteración el simplex puede cambiar tanto su forma como su volumen.

Durante cada iteración del método NM es necesario conocer el valor de la función objetivo en cada uno de los vértices y ordenarlos de modo que sea posible identificar los puntos correspondientes al mínimo (p_0), al máximo (p_n) y al segundo máximo (p_{n-1}) de la función objetivo.

La posición del nuevo vértice se calcula aplicando uno de los cuatro operadores permitidos por el algoritmo, a saber: reflexión, expansión, contracción unidimensional y contracción multidimensional. La Fig. 4.2 muestra como los operadores actúan sobre un simplex tridimensional, modificando su forma y su volumen. Por otra parte, en la tabla 4.1 se definen matemáticamente cada uno de los cuatro operadores, donde los coeficientes de reflexión, expansión, contracción unidimensional y contracción multidimensional se identifican como α , β , γ y δ respectivamente.

Una iteración del algoritmo de optimización NM incluye los siguientes pasos:

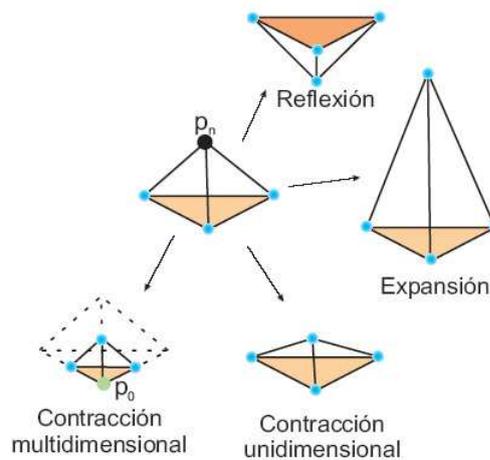


Figura 4.2: Operadores permitidos en el método downhill simplex actuando sobre un simplex tridimensional.

Operación	Definición matemática
Reflexión	$p_r = (1 + \alpha)p_c - \alpha p_n$
Expansión	$p_e = (1 - \beta)p_c + \beta p_r$
Contracción unidimensional	$p_{cont} = (1 - \gamma)p_c + \gamma p_n$ $p_{cont} = (1 - \gamma)p_c + \gamma p_r$
Contracción multidimensional	$p_{Si} = \delta(p_0 + p_i)$

Tabla 4.1: Definición matemática de los operadores utilizados por el método NM. Cada operador tiene asociado un parámetro. Nótese que la operación de contracción unidimensional se efectúa entre el centroide del simplex y el mejor de los dos puntos p_n y p_r .

1. Ordenar los $n + 1$ vértices del simplex e identificar los puntos p_0 , p_{n-1} y p_n
2. Calcular el centroide de los vértices del simplex (p_c), excepto p_n
3. Reflexión. Calcular el punto p_r . Si $f(p_0) < f(p_r) < f(p_{n-1})$, aceptar p_r como nuevo vértice y terminar la iteración.
4. Expansión. Si $f(p_r) < f(p_0)$, calcular el punto p_e , si $f(p_e) < f(p_r)$ aceptar el nuevo punto y terminar la iteración.
5. Contracción unidimensional. Si $f(p_r) \geq f(p_n)$ realizar una contracción entre p_c y el mejor entre p_n y p_r . Si $f(p_{cont}) < f(p_n)$, aceptar el punto p_{cont} y terminar la iteración, en otro caso ejecutar el paso 6.
6. Contracción multidimensional. Contraer el simplex alrededor de p_0 y terminar la iteración.

Al aplicar el operador de contracción multidimensional es necesario evaluar y clasificar los nuevos n vértices antes de comenzar una nueva iteración. A diferencia del resto de las

operaciones posibles en el método NM, una contracción multidimensional no garantiza que el promedio de los valores de la función objetivo evaluada en los vértices del simplex sea menor que el promedio correspondiente a la iteración anterior.

Siguiendo el algoritmo original [124], se utilizaron los valores $\alpha = 1$, $\beta = \frac{1}{2}$, $\gamma = 2$ y $\delta = \frac{1}{2}$. Existen numerosas referencias en las que se discuten mejoras en la convergencia del algoritmo con distintos conjuntos de parámetros y condiciones de convergencia [126–129], pero para el problema de optimización de dispositivos para hipersonido esta selección permite obtener resultados satisfactorios. Los vértices del simplex inicial se tomaron en forma aleatoria dentro de un hipercubo de 10 nm de lado. En algunos casos se incluyó un punto correspondiente a un arreglo periódico como semilla. Para casos complejos puede ser necesario incluir otras semillas, como por ejemplo para el filtro de color discutido en la Sec. 4.1.5.

4.1.3. Filtro de borde

Un filtro de borde es un dispositivo que tiene una alta transmisión por arriba (abajo) de una energía bien determinada, y una alta reflectividad por debajo (arriba) de la misma.

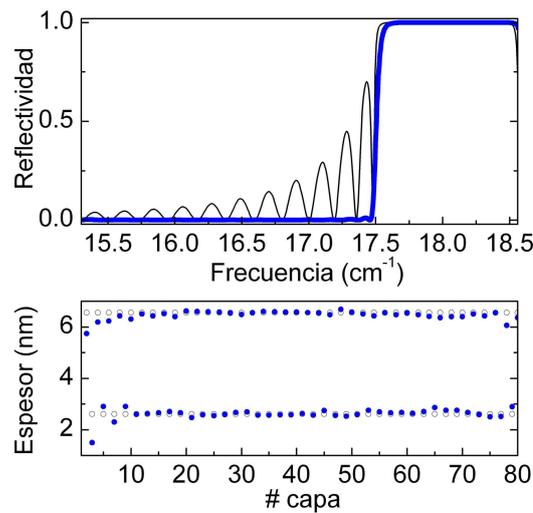


Figura 4.3: Panel superior: reflectividad acústica de una superred de 40 períodos de GaAs/AlAs (curva negra) y de un arreglo optimizado como filtro de borde de 80 capas de los mismos materiales (curva azul). Panel inferior: comparación entre la distribución de los espesores de la superred (\circ) y del dispositivo optimizado (\bullet).

En la Fig. 4.3 se muestra la reflectividad calculada para un filtro de borde optimizado de 80 capas de GaAs/AlAs. En adelante se referirá a este dispositivo como filtro de borde simple para distinguirlo de un filtro de borde más complejo que se analizará más adelante en esta sección. La reflectividad acústica de una superred se muestra en la misma figura para fines comparativos. Notar que en la región de baja energía, la reflectividad alcanza un valor nulo en todo el rango optimizado, y que en la parte de altas frecuencias, el stop-band es prácticamente idéntico al caso de la superred. La optimización fue realizada usando como semilla una superred de 80 capas de GaAs/AlAs de 6.56/2.61 nm, para obtener el filtro de

borde simple F_A . F_A se diseñó para presentar una banda de alta transmisión entre 15.30 y 17.49 cm^{-1} y una banda de alta reflectividad en la región comprendida entre 17.60 y 18.54 cm^{-1} . Fuera de la región de optimización (no mostrada en la figura), la reflectividad acústica presenta oscilaciones de interferencia que deben tenerse en cuenta al momento de utilizar este dispositivo. En el panel inferior de la Fig. 4.3, se muestran las distribuciones de espesores para el filtro de borde optimizado (círculos azules) y para el arreglo periódico de 80 capas usado como semilla (círculos vacíos en negro). La eliminación de las oscilaciones en la banda de baja energía puede lograrse introduciendo pequeñas variaciones en los espesores del arreglo periódicos. Dichas variaciones se encuentran concentradas en los extremos del dispositivo.

Resulta interesante notar que es posible cambiar la posición energética de la curva de reflectividad de una multicapa aperiódica, simplemente cambiando proporcionalmente todos los espesores de las capas. En la Fig. 4.4 se muestra la reflectividad acústica calculada de un filtro de borde optimizado alrededor de $\sim 18 \text{ cm}^{-1}$, y el efecto de aumentar o disminuir el espesor de todas las capas en un 40 %. Las regiones sombreadas indican la banda de energías optimizada. Notar que el ancho de la banda operativa del filtro de borde es proporcional a la energía. La posibilidad de mover energéticamente la banda optimizada permite el uso de un único proceso de optimización para múltiples energías. Como se verá más adelante, esta propiedad será particularmente útil para el diseño de filtros de color. Por otro lado, los efectos de atenuación acústica (no tenidos en cuenta en este trabajo) pueden ser relevantes para determinadas frecuencias y/o aplicaciones. En estos casos, donde

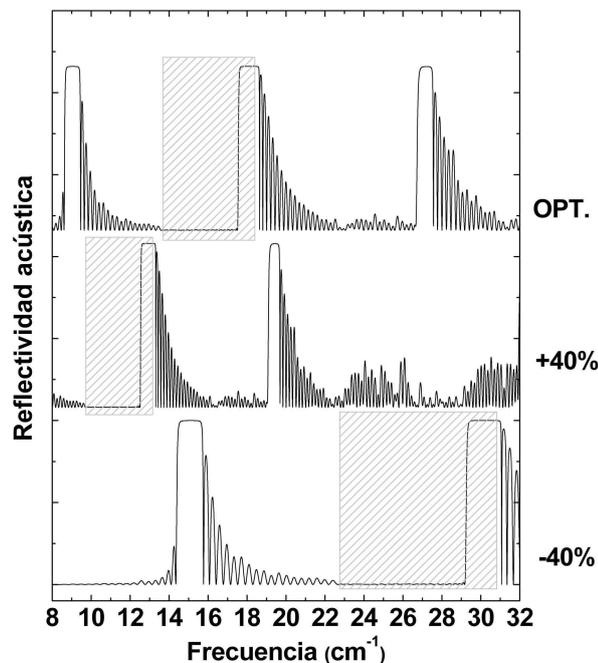


Figura 4.4: Cambios de escala en un filtro de borde optimizado. Las tres curvas de reflectividad corresponden a la estructura nominal optimizada (arriba), a una estructura con los espesores aumentados en un 40 % (centro), y a una estructura con los espesores reducidos en un 40 % (abajo).

existen parámetros dependientes de la energía, las propiedades de cambio de escala no se aplican, y es necesario realizar nuevas optimizaciones para cada caso en particular.

La respuesta de los sistemas basados en multicapas es el resultado de un proceso de interferencia, en el cual la reflectividad (y la transmisión) resultante para cada energía queda determinada por la fase que introduce cada una de las capas del sistema a la onda incidente y sus sucesivas reflexiones. En otras palabras, cada capa tiene asociada una fase e^{iqd} , donde q es el vector de onda acústico y d el espesor de la capa. Por lo tanto existe un período $T = 2\pi/q$ tal que $d + nT$ con n un número entero, que deja esta fase prácticamente inalterada para una banda de energías acotada. Usando esta característica es posible reajustar algunos espesores críticos sin cambiar significativamente la respuesta espectral del dispositivo optimizado. Como ejemplo, en la Fig. 4.5 se grafica el valor de la función objetivo de un filtro de borde, donde los espesores de las capas 15 y 16 se varían en forma continua de 0 a 11 nm. Las regiones más oscuras representan mayores niveles de optimización. Los puntos A y B corresponden a estructuras con similares valores de la función objetivo, y con respuestas espectrales equivalentes. De esta manera se hace evidente que no es necesario trabajar con espesores arbitrariamente grandes. En el presente trabajo se considera que 10 nm es un límite superior aceptable para los dispositivos de fonones acústicos optimizados.

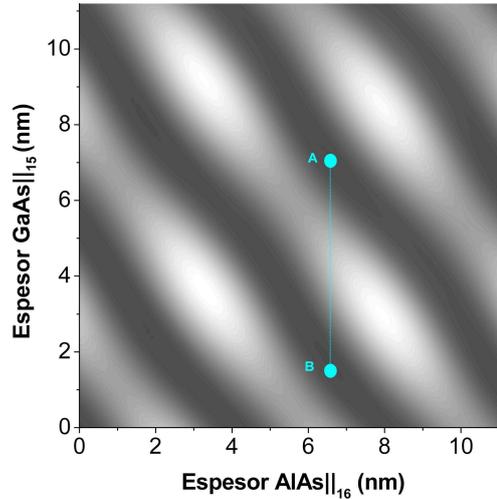


Figura 4.5: Valor de la función objetivo para el filtro de borde en función de los espesores de las capas 15 y 16. Las regiones más oscuras representan valores más bajos de la función objetivo.

Para los dispositivos de interés en este capítulo, la función objetivo propuesta presenta, además de los mínimos absolutos, infinitos mínimos locales. En la Fig. 4.6 se puede observar un corte de la función objetivo utilizada para el diseño de un filtro de borde. La evaluación de esta función se realizó según:

$$f(\alpha, \beta, \vec{p}_i, \vec{p}_j, \vec{p}_k) = f[\vec{p}_i + \alpha(\vec{p}_j - \vec{p}_i) + \beta(\vec{p}_k - \vec{p}_i)], \quad (4.3)$$

en la que α y β son los coeficientes de parametrización del plano determinado por los tres

puntos aleatorios ($\vec{p}_i, \vec{p}_j, \vec{p}_k$). De esta manera la evaluación de la función objetivo se realiza sobre un plano determinado por tres puntos que pertenecen a un hipercono de 10 nm de lado. Los puntos en la figura indican la posición de los mínimos relativos en el espacio analizado.

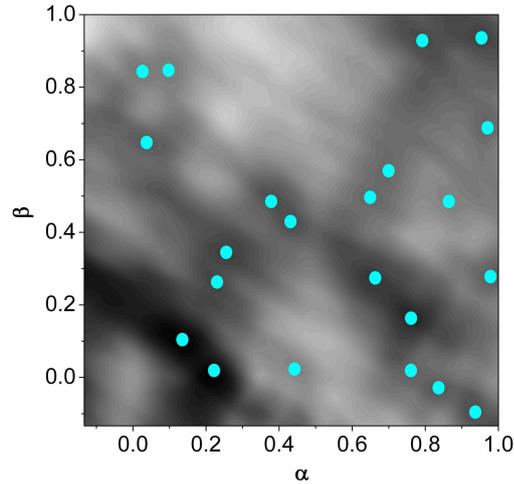


Figura 4.6: Corte bidimensional de la función objetivo para el filtro de borde evaluada en un plano definido por tres puntos aleatorios dentro de un hipercono de 80 dimensiones de 10 nm de lado. Los puntos indican mínimos relativos en la región analizada.

La presencia de mínimos relativos puede dificultar el proceso de optimización, y ocultar la existencia de mínimos absolutos cercanos. En la Fig. 4.7 se observa otro corte de la función objetivo. En este caso, el plano sobre el que se realizó la evaluación incluye un mínimo aceptable (indicado con la letra A). Existe además un mínimo local (C), que no es solución del problema y que se encuentra en un entorno de la solución hallada. Un método de optimización basado en gradientes, cuyo punto inicial se encuentre en los alrededores de uno de estos mínimos locales, probablemente convergerá en un punto que no represente una solución lo suficientemente buena. Asimismo se puede observar la presencia de otros dos mínimos locales, D y E. Un simplex inicial alrededor de D (E), con un volumen lo suficientemente grande como para escapar a este mínimo relativo, probablemente convergerá en el mínimo ubicado en C (A), ilustrando de esta manera la importancia de la selección de las semillas iniciales para procesos de optimización. El diseño apropiado de una semilla puede implicar uno o varios procesos de optimización previos como se mostrará en las Sec. 4.1.5 y 4.1.6.

El uso de semillas no sólo reduce la probabilidad de caer en un mínimo relativo, sino que también permite acelerar el proceso de optimización. La Fig. 4.8 muestra el valor de la función objetivo evaluada para el filtro de borde como función del número de iteración para diferentes condiciones iniciales del simplex. Las curvas marcadas con RND corresponden al caso donde todos los vértices del simplex son estructuras aleatorias con capas de espesores entre 0 y 10 nm. La segunda condición inicial estudiada consiste en introducir una única semilla en el simplex, y dejar el resto de los vértices con estructuras aleatorias (curvas

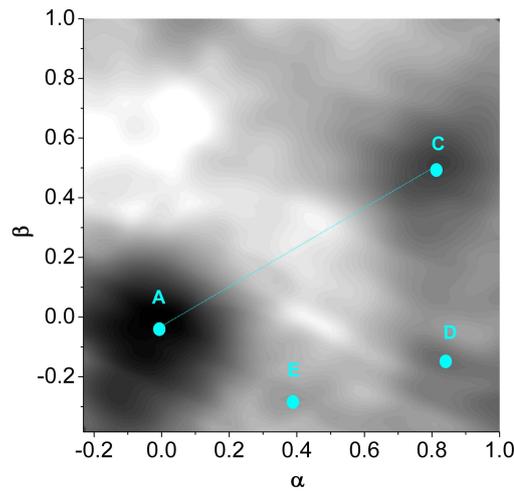


Figura 4.7: Corte bidimensional de la función objetivo para el filtro de borde evaluada en el entorno de un dispositivo optimizado (mínimo absoluto A en (0.0, 0.0), tomando como puntos de referencia la estructura optimizada y dos puntos aleatorios dentro de un hipercubo de 80 dimensiones de 10 nm de lado. Nótese la cercanía de los mínimos relativos en C, D, y E.

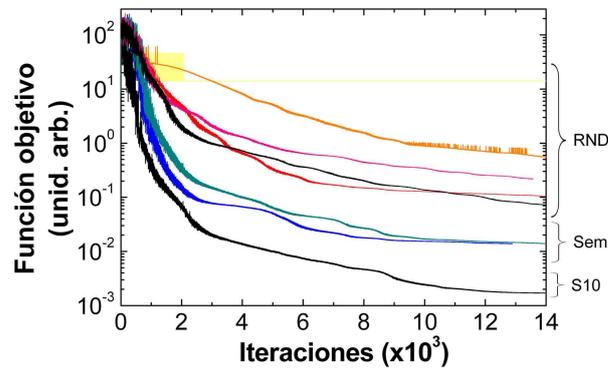


Figura 4.8: Función objetivo evaluada como función del número de iteración para tres condiciones iniciales diferentes para el simplex: con una única semilla (Sem), con semillas múltiples distribuidas alrededor de un único punto (S10), y con un conjunto completo de estructuras aleatorias (RND).

indicadas con Sem en la figura). Finalmente, se consideró un caso donde se introduce una semilla, y el resto de los vértices se genera a partir de esta estructura introduciendo variaciones aleatorias en cada capa de hasta un 10 % (curvas indicadas con S10 en la figura). Este último caso describe un simplex inicial (pequeño) definido alrededor de la semilla. Este método es el que converge más rápido, pero sondea una región muy limitada del espacio de parámetros. Los casos Sem también muestran una rápida convergencia, aunque los valores de la función objetivo luego de 10000 iteraciones no son mejores que los alcanzados con S10. Sin embargo, las soluciones encontradas son lo suficientemente buenas como para tomarse como diseños aceptables. La opción RND, con un simplex inicial aleatorio es la

que presenta los peores resultados, y la convergencia más lenta, causados por el espacio de parámetros extendido que sondea. En algunos casos, este método converge a mínimos locales, brindando soluciones descartables.

Un conjunto alternativo de parámetros de optimización son las impedancias acústicas de las capas que forman la estructura. El cambio de la impedancia acústica de una determinada capa se puede realizar cambiando el contenido de Al en una aleación $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$. Para ilustrar la implementación de esta estrategia, se diseñó un segundo filtro de borde (F_{Al}) formado por una multicapa de $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$, con x diferente para cada capa, y los espesores formando un arreglo periódico. El único parámetro libre para la optimización es entonces el contenido x de Al en cada capa. La Fig. 4.9 muestra la reflectividad acústica obtenida y la distribución de contenido de Al en la estructura. Se usó una superred formada por 80 capas de GaAs/AlAs 6.56/2.61 nm como semilla, y el resto de los vértices del simplex inicial formados por estructuras idénticas, pero con las capas de GaAs (AlAs) reemplazadas por $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ con $x < 0.15$ ($x > 0.85$), definido independientemente en cada capa. Puede observarse que el borde de la zona de alta reflectividad se encuentra levemente corrido hacia la región de altas frecuencias. Asimismo, las oscilaciones en la banda de transmisión del filtro de borde fueron eliminadas casi completamente. La variación del ancho del stop-band, y su desplazamiento se originan en el apartamiento de la relación ($3\lambda/4, \lambda/4$) para los espesores que forman la estructura: debe notarse que al cambiar la composición en una capa, están cambiando también su densidad y su velocidad del sonido, y por lo tanto, el espesor correspondiente a una longitud de onda para fonones de una dada energía.

Es importante remarcar dos puntos respecto a la optimización en composición: 1) si bien la optimización en composición permite obtener resultados comparables a la optimización

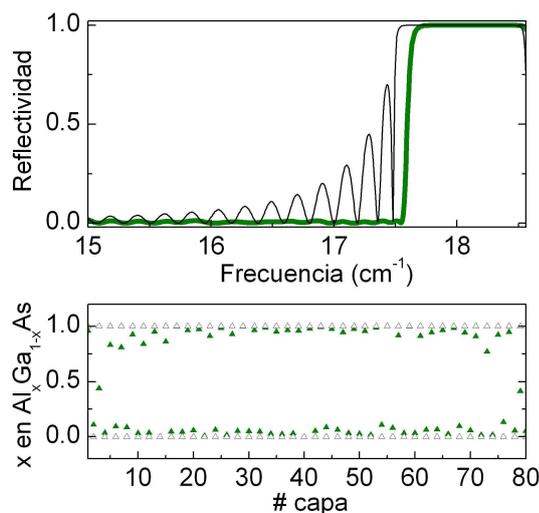


Figura 4.9: Panel superior: reflectividad acústica de una superred de 40 períodos de GaAs/AlAs (curva negra) y de un arreglo optimizado en composición como filtro notch de 80 capas (curva verde). Panel inferior: comparación entre la distribución de composiciones de la superred (Δ) y del dispositivo optimizado (\blacktriangle).

en espesores, el crecimiento de muestras es mucho más complejo. 2) Desde un punto de vista teórico, junto con los espesores, se puede duplicar el número de parámetros de optimización para un único dispositivo. En otras palabras, para objetivos complejos, o con restricciones sobre los espesores utilizables, se podría realizar una optimización de espesores y composiciones de todas las capas.

4.1.4. Filtro notch

El segundo dispositivo optimizado es un filtro notch. Un filtro notch es un dispositivo que bloquea la transmisión de una banda angosta de frecuencias y permite el paso de frecuencias por encima y por debajo de esta banda. La función de reflectividad buscada puede ser vista como la reflectividad de una superred, sin las oscilaciones características a ambos lados del stop-band. Esto sugiere la utilización de una superred como semilla para la optimización de los espesores de las capas que forman el arreglo, como en el caso del filtro de borde simple. La posición espectral y el ancho de la región de alta reflectividad estarán entonces determinadas por el stop-band de la semilla. La Fig. 4.10 muestra la reflectividad acústica calculada para el filtro notch optimizado. La reflectividad de la semilla utilizada se muestra en la misma figura. En el panel inferior de la Fig. 4.10 se indican los espesores de las capas que forman la estructura optimizada, comparados con los de un espejo de fonones periódico GaAs/AlAs 6.56/2.61 nm (es decir, una relación de espesores $(3\lambda/4, \lambda/4)$). Puede observarse que, al igual que en el caso del filtro de borde F_A , las variaciones más grandes respecto al arreglo periódico se producen al principio y al final de la estructura. Sin embargo, en comparación con F_A , las modificaciones son más importantes, y se extienden a lo largo de toda la estructura. A excepción de dos oscilaciones que aparecen fuertemente atenuadas a ambos lados del stop-band, el resto de las oscilaciones fueron

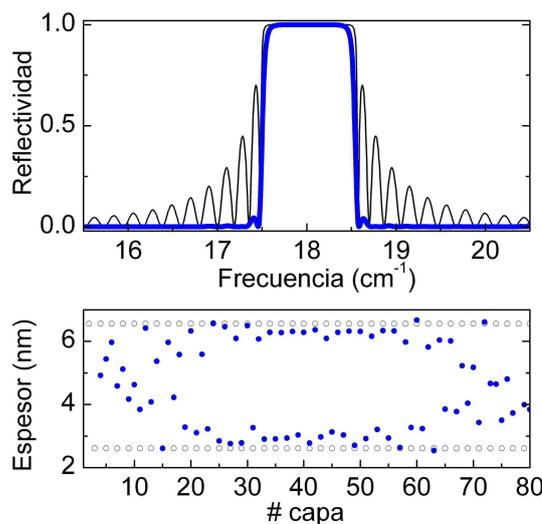


Figura 4.10: Panel superior: reflectividad acústica de una superred de 40 períodos de GaAs/AlAs (curva negra) y de un arreglo optimizado como filtro notch de 80 capas de los mismos materiales (curva azul). Panel inferior: comparación entre la distribución de los espesores de la superred (\circ) y del dispositivo optimizado (\bullet).

eliminadas casi por completo. La reflectividad dentro de la banda de baja transmisión permanece prácticamente inalterada, aunque los bordes aparecen levemente redondeados.

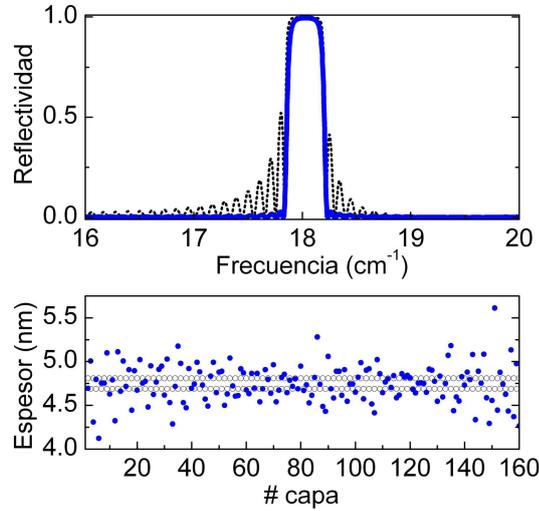


Figura 4.11: Panel superior: reflectividad acústica de una superred de 40 períodos de GaAs/AlAs (curva negra) y de un arreglo optimizado como filtro notch de 80 capas de los mismos materiales (curva azul). Panel inferior: comparación entre la distribución de los espesores de la superred (\circ) y del dispositivo optimizado (\bullet).

Como se ha mencionado anteriormente, el ancho del stop-band depende del contraste de impedancias acústicas entre los materiales utilizados, y de la relación de espesores. Para cambiar este ancho, es posible cambiar los materiales (utilizando por ejemplo aleaciones del tipo $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$), o modificar el espesor relativo de las capas que forman el período de la superred usada como semilla [2]. Eligiendo esta última opción, se diseñó un segundo filtro notch fonónico con una banda de alta reflectividad reducida. Primero se tomó una estructura periódica con una relación de espesores de manera que se logre el ancho de stop-band deseado. Luego, se utilizó esta estructura como semilla de un proceso de optimización, con el objetivo de eliminar las oscilaciones a ambos lados del stop-band. La Fig. 4.11 muestra la curva de reflectividad para un filtro notch optimizado. En el mismo panel se incluye también la reflectividad de un espejo de fonones periódico GaAs/AlAs ($0.55\lambda, 0.45\lambda$), usado como semilla del proceso de optimización. El dispositivo optimizado presenta una banda de alta reflectividad equivalente al 30% del ancho del primer filtro notch. Se obtuvo un stop-band con un ancho de 0.32 cm^{-1} . Luego del proceso de optimización se observa que los bordes de la banda de alta reflectividad aparecen redondeados. Con la excepción de pequeños detalles a los costados del stop-band, todas las oscilaciones han sido completamente eliminadas. La pendiente en la transición entre las regiones de alta transmisión y alta reflectividad se vió levemente modificada durante el proceso de optimización. En el panel inferior de la Fig. 4.11, se puede observar la distribución de espesores tanto del dispositivo optimizado, como la del espejo de fonones con un stop-band reducido. En este caso es posible observar que existen importantes cambios en los espesores de todas las capas que forman el filtro notch respecto al arreglo periódico utilizado como semilla.

El método de optimización NM, en general, converge a un mínimo dentro o cerca del volumen definido por el simplex inicial. Dadas las características de la función reflectividad, existen múltiples mínimos, y múltiples soluciones posibles. A pesar de ello, existen determinadas reflectividades objetivo donde el uso de una semilla es necesario para evitar converger a un mínimo local o para acelerar el proceso de convergencia hacia un mínimo buscado. A continuación se analiza el diseño de dos dispositivos donde la selección de las semillas requiere un proceso de optimización preliminar.

4.1.5. Filtro de color

Los filtros de color son dispositivos con características de transmisión selectiva, capaces de permitir la transmisión de una banda del espectro, al mismo tiempo que son altamente reflectivos para las bandas adyacentes. Son el inverso de los filtros notch. La Fig. 4.12c muestra la reflectividad acústica. La correspondiente distribución de espesores para una estructura optimizada como filtro de color, de 160 capas de GaAs/AlAs se muestra en la Fig. 4.12d. La banda de transmisión fue establecida en el intervalo $16.95\text{-}17.45\text{ cm}^{-1}$.

El diseño del filtro de color se realizó en un proceso de optimización en dos etapas. El primer paso consiste en dos optimizaciones: una superred de 80 capas de GaAs/AlAs $6.56/2.61\text{ nm}$ fue usada como semilla para obtener un filtro F_A (Fig. 4.12b), idéntico al filtro de borde simple estudiado en la Sec. 4.1.3. Una segunda superred periódica de 80 capas de GaAs/AlAs $7.19/2.85\text{ nm}$ fue usado para obtener un segundo filtro de borde F_B (Fig. 4.12a). F_B fue optimizado para presentar una región de alta transmisión en la banda deseada, y una banda de alta reflectividad entre 15.98 y 16.85 cm^{-1} . A fines comparativos, la reflectividad de los espejos periódicos usados como semillas se incluye en la misma figura. El filtro de color optimizado es entonces una estructura de 160 capas formada por la concatenación de $F_B + F_A$. Una segunda etapa de optimización puede ser implementada para refinar los detalles de interferencia que pueden surgir del acoplamiento de los dos filtros de borde. En este caso en particular, no se efectuó esta última optimización.

Para ilustrar la diversidad de soluciones aceptables para un determinado dispositivo, se diseñó un segundo filtro de color, cambiando la semilla inicial. Se diseñó un segundo filtro de borde F_C sin utilizar ninguna semilla en el simplex inicial, es decir, todos los vértices en el simplex inicial están asociados a estructuras con espesores aleatorios. El segundo paso consistió en la optimización del filtro de color deseado usando la estructura de 160 capas $F_C + F_A$ como semilla. En la Fig. 4.13 se muestra la curva de reflectividad del dispositivo optimizado junto con la de un espejo periódico de 160 capas. En el panel inferior, se pueden observar las distribuciones de espesores tanto de la estructura optimizada como del arreglo periódico. La parte más desordenada corresponde a la parte de la muestra relacionada con el filtro F_C obtenido a partir de estructuras aleatorias. Usando el esquema de optimización descrito, es sencillo fijar la banda de transmisión del filtro de color, ajustando simplemente las posiciones de los filtros F_A y F_C (o F_A y F_B) usados como semillas.

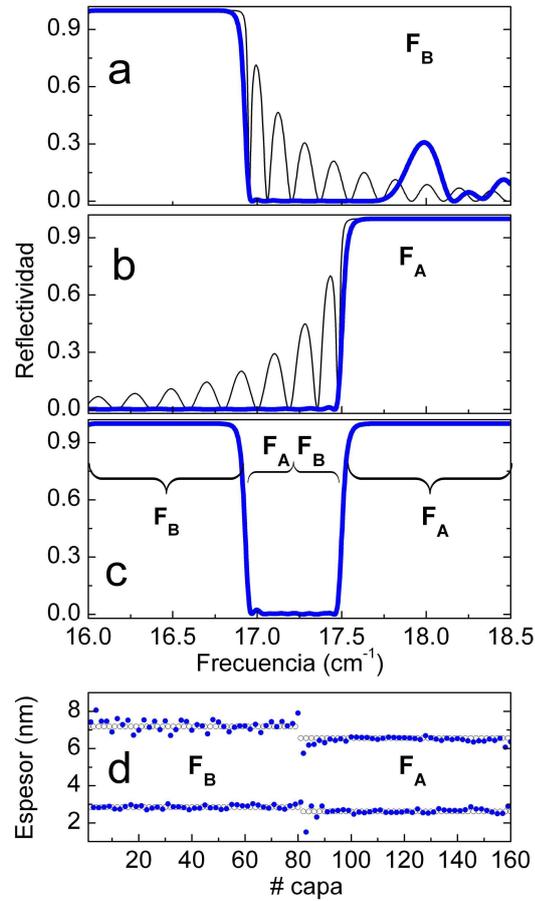


Figura 4.12: Diseño de un filtro de color fonónico. a) Reflectividad acústica de un primer filtro de borde optimizado F_B (curva azul) y del arreglo periódico utilizado como semilla (negro). b) Reflectividad acústica de un primer filtro de borde optimizado F_A (azul) y de su correspondiente semilla (negro). c) Reflectividad acústica calculada para un filtro de color formado por 160 capas de GaAs/AlAs. d) Espesores de las capas correspondientes al filtro de color optimizado (●) y de los correspondientes espejos fonónicos usados como semillas de F_A y F_B (○).

4.1.6. Filtro de borde de banda ancha

El último dispositivo diseñado es un filtro de borde de banda ancha (en adelante filtro de borde), cuya curva de reflectividad se puede apreciar en la Fig. 4.14. La curva de reflectividad objetivo presenta una región de alta reflectividad dos veces más ancha que la del correspondiente dispositivo periódico. Puede observarse que esta reflectividad se reproduce de manera notable. El diseño del filtro de borde se realizó mediante un proceso de optimización de dos etapas, similar al presentado para el filtro de color. El primer paso consistió en dos optimizaciones independientes: una superred de 80 capas de GaAs/AlAs 6.56/2.61 nm se usó como semilla para obtener dos filtros diferentes F_A y F_D . El filtro F_A es el mismo filtro analizado en la Sec. 4.1.3, mientras que F_D se diseñó para tener la misma banda de alta transmisión, pero lograr una condición de alta reflectividad en la banda 18.5-19.5 cm^{-1} (ver el panel superior de la Fig. 4.14). Tanto en el caso de F_A como en el de

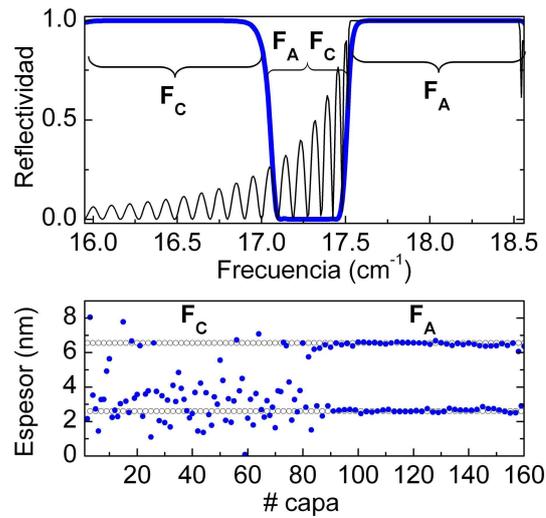


Figura 4.13: Panel superior: reflectividad acústica de una superred de 80 períodos de GaAs/AlAs (curva negra) y de un arreglo optimizado como filtro de color de 160 capas de los mismos materiales (curva azul). Panel inferior: comparación entre la distribución de los espesores de la superred (\circ) y del dispositivo optimizado (\bullet).

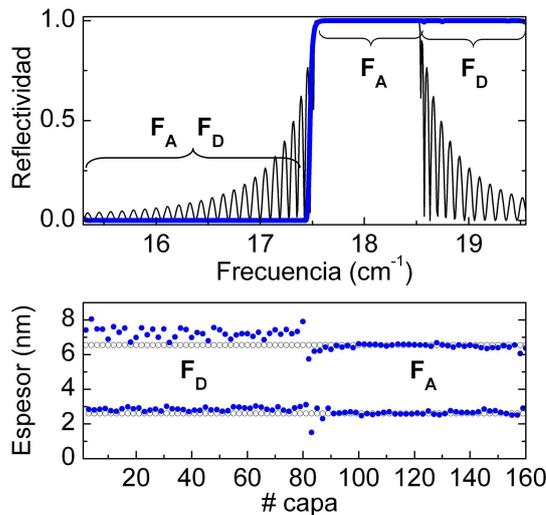


Figura 4.14: Panel superior: reflectividad acústica de una superred de 80 períodos de GaAs/AlAs (curva negra) y de un arreglo optimizado como filtro de banda ancha de 160 capas de los mismos materiales (curva azul). Panel inferior: comparación entre la distribución de los espesores de la superred (\circ) y del dispositivo optimizado (\bullet).

F_D hubiese sido posible usar estructuras aleatorias, u otra semilla con el minigap ubicado en la región de alta reflectividad deseada. El segundo paso consistió en la optimización del filtro de borde deseado con la estructura de 160 capas $F_D + F_A$ como semilla. En el panel inferior de la Fig. 4.14 se muestra la distribución de espesores del filtro de borde obtenido (círculos azules) y de las semillas utilizadas en la optimización de F_A y F_D (círculos vacíos). Las mayores desviaciones del caso periódico se dan en la parte relacionada con F_D , indicando

que la reflectividad objetivo no tiene ninguna estructura real asociada “cerca” de la semilla periódica. La última etapa de optimización es un paso de refinamiento, y sólo se producen pequeñas variaciones respecto a las distribuciones de espesores originales de F_A y F_D . La relevancia de esta etapa está principalmente determinada por el nivel de acuerdo entre las semillas utilizadas y el dispositivo final buscado.

4.2. Caracterización y estudio experimental de dispositivos fonónicos

En nanofonónica de THz, aún no se cuenta con la vasta variedad de generadores y detectores que permitan una caracterización directa y sencilla de los dispositivos para hipersonido desarrollados. La dispersión Raman ha sido utilizada por mucho tiempo para caracterizar multicapas semiconductoras tanto periódicas como no-periódicas (por ejemplo, Fibonacci, Thue-Morse, y aleatorias). Los espectros de dispersión Raman permiten obtener información de los estados vibracionales de las estructuras complejas estudiadas. En esta sección se presentan los resultados de la caracterización estructural, electrónica y vibracional de dispositivos fonónicos aperiódicos.

Se seleccionaron tres muestras para ser crecidas y caracterizadas: el espejo de banda ancha, el filtro de color y el filtro de borde. Las muestras fueron crecidas por MBE sobre sustratos de GaAs orientados en la dirección (001). Las multicapas aperiódicas de GaAs/AlAs fueron caracterizadas estructuralmente por difracción de rayos X de alta resolución (HRXRD) y electrónicamente por fotoluminiscencia. La caracterización vibracional se realizó por dispersión Raman utilizando diferentes geometrías de medición.

4.2.1. Caracterización estructural y electrónica de las muestras

Existen trabajos previos en donde estructuras no-periódicas fueron caracterizadas por medio de HRXRD, en particular arreglos de Fibonacci y multicapas con espesores aleatorios, demostrando la utilidad de esta técnica incluso en muestras en donde el teorema de Bloch no es válido [61, 130–132]. En la Fig. 4.15 se muestran los difractogramas $\theta - 2\theta$ de alta resolución realizados sobre los tres dispositivos estudiados. Se pueden observar tanto las curvas experimentales (negro) como las simulaciones (rojo) para el filtro de color (arriba), el filtro de borde (centro) y el espejo de banda ancha (abajo).

A pesar de la complejidad en la distribución de espesores que presentan estas muestras (ver Figs. 4.1, 4.14 y 4.12), es posible asignar directamente algunos picos en los difractogramas. Tanto en el difractograma del filtro de color como en el del filtro de borde, se pueden distinguir varios picos satélites (indicados con flechas verticales en la Fig. 4.15). Las posiciones de estos picos se corresponden con una periodicidad de 9.2 nm (± 0.1 nm). Esto quiere decir que estos picos son originados en la parte más regular de las muestras (F_A). En el caso del espejo de banda ancha, además del pico del sustrato ubicado aproximadamente a 33° , se pueden observar cuatro intervalos cuadrados con señales más intensas. Estos intervalos pueden relacionarse con los picos característicos de una superred periódica, y ensanchados debido al gradiente de espesores presente en la muestra. El acuerdo

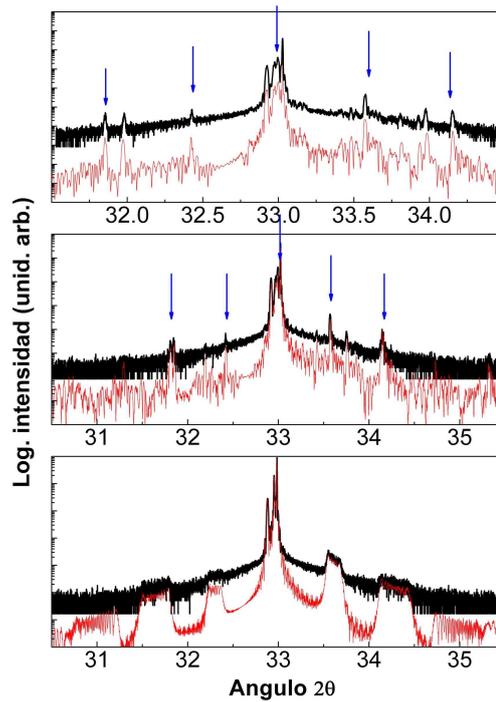


Figura 4.15: Datos experimentales de difracción de rayos X de alta resolución (negro) y difractogramas simulados (rojo) para los tres dispositivos fonónicos estudiados: filtro de color (arriba), filtro de borde (centro) y espejo de banda ancha (abajo). El estudio de HRXRD de los dispositivos para fonones fue realizado por O. Mauguin y L. Largeau del Laboratoire de Photonique et des Nanostructures [133].

general entre experimentos y simulaciones usando los valores nominales para los espesores es excelente en los tres dispositivos. Se ha verificado que movimientos rígidos de los espesores no mejoran el acuerdo entre experimentos y simulaciones. A pesar de que estudios previos indican que gran parte de las estructuras observadas en los difractogramas no son particularmente afectados por desorden aleatorio, la HRXRD sigue siendo una importante herramienta para la caracterización estructural básica de las muestras.

La fotoluminiscencia provee información complementaria a la obtenida con difracción de rayos X, ya que permite acceder a la información referida a los niveles electrónicos, que están determinados por el confinamiento en las capas de GaAs. Esta característica, en principio, podría ser utilizada para determinar espesores. En este apartado se presentan los resultados experimentales y simulaciones de fotoluminiscencia que proveen información para identificar y caracterizar los dispositivos optimizados de fonones acústicos. La fotoluminiscencia puede ser utilizada como una herramienta rápida de caracterización de este tipo de muestras. En este caso, los experimentos fueron realizados a 80 K, usando como excitación la línea de 514.5 nm de un láser de Ar-Kr.

Para simular el proceso de fotoluminiscencia en los dispositivos fonónicos, se consideró la suma de las emisiones de los pozos cuánticos individuales de GaAs, cada uno contribuyendo con una emisión modelada como una distribución Gaussiana centrada en la energía fundamental del gap calculada E_0 . Se tuvieron en cuenta dos procesos de absorción en la

muestra: 1) la absorción de la radiación incidente que afecta la excitación de cada pozo cuántico, y 2) la absorción de la señal de fotoluminiscencia emitida por cada pozo cuántico. Se despreció la emisión que sigue a esta absorción. Ambos procesos fueron introducidos en la simulación como factores de decaimiento exponenciales, estableciendo que la luz emitida por un determinado pozo cuántico (QW) puede ser sólo absorbida por QW más anchos presentes entre el QW emisor y la superficie de la muestra. La energía E_0 para cada QW fue calculada usando el método de las matrices de transferencia, modelando cada QW por una superred efectiva finita con barreras de potencial infinitas como condiciones de contorno en ambos extremos de la estructura. El programa realiza un barrido en energía hasta que alcanza un valor para el cual la función de onda cumple con las condiciones de contorno. Para los huecos pesados se consideraron bandas parabólicas, y para los electrones Gamma, el apartamiento de la parabolicidad fue descrito por un modelo de funciones envolventes de dos bandas. El potencial de la banda fue tomado como $E_g = 1519$ meV para GaAs y 2577 meV para AlAs. Las masas efectivas (en unidades de masa de un electrón libre) utilizadas fueron $m_{\Gamma-GaAs}=0.067$, $m_{\Gamma-AlAs}=0.130$, $m_{hh-GaAs}=0.38$, y $m_{hh-AlAs}=0.70$; la constante dieléctrica usada fue 12.83.

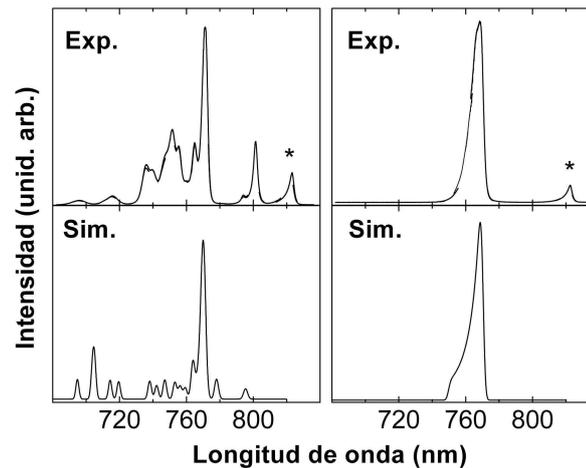


Figura 4.16: Espectros de fotoluminiscencia medidos (arriba) y simulados (abajo) para el filtro de borde (izquierda) y para el espejo de banda ancha (derecha). Las simulaciones no tienen en cuenta fenómenos de relajación térmica intra y entre pozos. Los asteriscos indican la emisión del sustrato de GaAs.

Los tres dispositivos aperiódicos presentan espectros de fotoluminiscencia diferentes, y sus características principales son correctamente reproducidas por las simulaciones. Como ejemplos, en la Fig. 4.16 se presentan los espectros de fotoluminiscencia medidos (paneles superiores) y simulados (paneles inferiores) para el filtro de borde (izquierda) y el espejo de banda ancha (derecha). El pico a 825 nm (indicado con un asterisco) corresponde al sustrato masivo de GaAs. Comparando los resultados experimentales con las simulaciones, es posible identificar el origen de las contribuciones que forman los espectros complejos de fotoluminiscencia. El espejo de banda ancha presenta la estructura más simple de los tres dispositivos estudiados: una variación constante en la distribución de los espesores de las capas. Esta variación produce un ensanchamiento de un único pico de fotoluminiscencia

centrado en 765 nm. Los procesos de fotoluminiscencia de más alta energía se producen en las partes más internas de la muestra, y por lo tanto los QWs interiores son excitados de manera menos eficiente, y su emisión es absorbida en el camino a la superficie de la muestra. Esto se refleja en una fuerte asimetría del pico. La simulación reproduce tanto su posición como la forma general del mismo. En el caso del filtro de borde, se puede observar un pico aproximadamente a 770 nm y una serie de picos a más altas energías. El pico principal corresponde a la emisión de la parte regular de la muestra F_A , mientras que el resto se asocia a las emisiones de los QWs que forman F_D , donde prácticamente todas las capas son de mayor espesor. Debe notarse que la simulación no incluye procesos de re-emisión y, aún más importante, no se considera la termalización dentro y entre los pozos cuánticos. La alta complejidad de estos procesos dificulta tenerlos en cuenta al momento de realizar las simulaciones, y constituyen una fuerte limitación en el uso de la fotoluminiscencia como una herramienta de caracterización completa de las propiedades estructurales de las muestras.

4.2.2. Dispersión Raman y el problema inverso

En el campo de la óptica, una variada gama de fuentes y detectores de luz permiten realizar una caracterización de los filtros y espejos de luz. Por el contrario, en el estudio de los fonones del rango THz no existen fuentes y detectores con la flexibilidad espectral y la resolución requerida. Estudios previos han demostrado que la dispersión Raman es una poderosa herramienta para estudiar el espectro de fonones acústicos en superredes periódicas [2], cuasiperiódicas y no-periódicas [130, 134]. En muestras no-periódicas, los espectros Raman muestran una compleja serie de picos en la región de energías de los fonones acústicos. La riqueza de esos espectros puede ser considerada como una “huella digital” de las vibraciones de las estructuras que puede ser usada como herramienta de caracterización. Los espectros Raman podrían usarse, además, para resolver el problema inverso, es decir, obtener los espesores de las capas de datos medidos en experimentos de dispersión Raman. Una posible herramienta para caracterizar los dispositivos fonónicos a través de sus propiedades acústicas podría ser la implementación de un código de optimización basado en el algoritmo NM, con funciones objetivo múltiples basadas en los espectros Raman bajo diferentes condiciones experimentales, y la estructura nominal como semilla. En esta sección, y para analizar el potencial real de esta estrategia, se considerarán dos geometrías experimentales descritas anteriormente: BS, donde $k_l \sim -k_d$ y $q \sim 2k_l$; y FS, donde $k_l \sim k_d$ y $q \sim 0$, aquí k_l y k_d se refieren a los vectores de onda de la luz incidente y dispersada respectivamente, y q es el número de onda transferido a los fonones.

Para evaluar las secciones eficaces Raman de excitaciones acústicas, se utilizó el modelo fotoelástico descrito en la Sec. 2.3.2. Se usaron valores complejos para las constantes fotoelásticas del GaAs y del AlAs válidas a 514.5 nm [135, 136]. La absorción se incluye a través de los índices de refracción complejos para la longitud de onda del láser utilizado. En una medición en BS puede inferirse que, debido a los efectos de absorción, las mayores contribuciones a la señal provendrán de las capas más cercanas a la superficie, mientras que en el caso de la geometría FS la señal tiene contribuciones de toda la muestra atenuadas de la misma manera (ecs. 2.44 y 2.45). En el caso BS, el fotón incidente se propaga dentro

de la muestra hasta un punto donde es dispersado, el fotón dispersado recorre el mismo camino que el fotón incidente, en sentido contrario. En el caso FS, por el contrario, el fotón incidente se propaga dentro de la muestra hasta el punto en donde es dispersado, y el fotón dispersado continua su propagación hasta el final de la muestra en la misma dirección. La suma del camino recorrido es dependiente (independiente) de la posición en la muestra para BS (FS). Es claro entonces que los espectros FS no sólo proveen información adicional, sino que es complementaria a la obtenida en BS, lo que demuestra la importancia de la realización de los experimentos en ambas geometrías.

Para ilustrar el problema de ingeniería inversa, es decir, la determinación de los espesores de las capas que forman una determinada estructura dados los espectros experimentales Raman, se analiza el caso del filtro de color presentado en la Sec. 4.1.5 (Fig. 4.13, 160 capas). Para simplificar el problema, se considerarán sólo dos parámetros: la variación entre el 90 % y 110 % del valor nominal de los espesores de la capas para cada material (GaAs y AlAs). Luego del diseño y optimización del filtro de color se obtiene la distribución de espesores nominales (Fig. 4.13, panel inferior). Para continuar con el ejemplo, se supone que esa muestra se crece por MBE, que los espesores de todas las capas de GaAs se redujeron en un 2 % , y que todos los espesores de las capas de AlAs se incrementaron en un 1 %. En este experimento pensado, se obtienen los espectros de dispersión Raman en distintas geometrías y se comparan los resultados *experimentales* con las simulaciones. El objetivo es encontrar el punto (0.98, 1.01) comparando las simulaciones de los espectros Raman usando diferentes espesores de GaAs y AlAs con los espectros medidos.

En la Fig. 4.17 se grafica la función objetivo en función de los dos parámetros estudiados. Se simularon dos resoluciones experimentales: $\sigma=0.01 \text{ cm}^{-1}$ (paneles de la izquierda) alcanzable con un esquema de ultra-alta resolución y $\sigma=0.20 \text{ cm}^{-1}$ (paneles de la derecha), alcanzable con un espectrómetro triple como el utilizado en la siguiente sección. Los paneles superiores (centrales) muestran el uso de un espectro BS (FS) como objetivo, mientras que los paneles inferiores usan ambos espectros (BS+FS). El cruce de las líneas blancas indica la posición del mínimo absoluto. Es importante notar que la topología es mucho más suave en el caso BS+FS, y que el mínimo absoluto se encuentra mejor definido. Disminuyendo la resolución de trabajo, todo el espacio de parámetros se aplana, y las regiones que definen mínimos se ensanchan y extienden.

La solución eficiente del problema inverso, es decir, la determinación de los espesores reales de la estructura a partir de los resultados experimentales de dispersión Raman, presenta al menos dos problemas fundamentales: la unicidad de las soluciones, y el desarrollo de un modelo confiable de los procesos de dispersión Raman. Desde un punto de vista teórico, la señal Raman compleja y definida en todo el espectro contiene suficiente información para resolver el problema inverso. Sin embargo, en experimentos de dispersión Raman reales, lo que se mide es la intensidad en una banda acotada de energías. Existen múltiples soluciones que resultan prácticamente en el mismo espectro Raman en un intervalo espectral particular. Además, la fuerte absorción en las muestras del orden de 300 nm de espesor, limita el número de capas que pueden ser analizadas en un experimento de dispersión Raman excitadas por un láser en el rango visible. La mayor contribución para los espectros tomados en geometría BS proviene de las capas que están cerca de la superficie de excitación dentro de

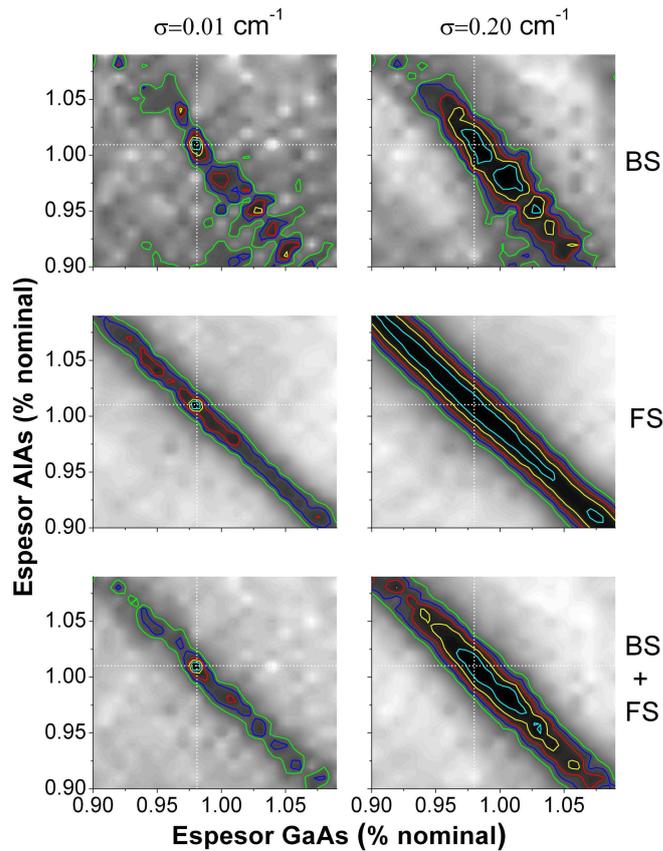


Figura 4.17: Función objetivo del filtro de color evaluada para estructuras con espesores modificados por factores entre 0.96 y 1.1 para cada material. Se simuló dos resoluciones experimentales: $\sigma=0.01 \text{ cm}^{-1}$ (paneles de la izquierda) y $\sigma=0.20 \text{ cm}^{-1}$ (paneles de la derecha). Los paneles superiores (centrales) ilustran el uso de un espectro BS (FS) como objetivo, mientras que en los paneles inferiores se usan los espectros BS y FS. El cruce de las líneas blancas indica la posición del mínimo absoluto.

la longitud de penetración ($\sim 55 \text{ nm}$ a 514.5 nm para GaAs masivo). El uso de un láser en el rango infrarrojo cercano, para el cual la longitud de penetración es mayor, está limitado por las débiles intensidades Raman asociadas. El uso de sólo un espectro Raman BS para resolver el problema inverso lleva a múltiples soluciones factibles (ver paneles superiores de la Fig. 4.17). El uso de líneas de excitación adicionales produce restricciones adicionales en el problema de optimización que podrían limitar el número de soluciones factibles. Sin embargo, estas nuevas condiciones de contorno resultan en espectros con una contribución limitada de las capas interiores, brindando información complementaria principalmente asociada a las capas exteriores. Una alternativa para reducir el espacio de soluciones es el uso de otras geometrías. En este apartado se consideraron dos posibles soluciones: realizar experimentos en geometría BS desde la parte posterior de las muestras, en donde la contribución de las capas más cercanas al sustrato será la más importante; y FS, donde los efectos de absorción afectan a todas las capas por igual. La determinación de la estructura real, usando los espectros BS y FS, representa una posibilidad hacia la definición de un

problema inverso bien planteado. El aumento en la resolución de trabajo permite develar detalles en los espectros que ayudan a reducir las áreas correspondientes a mínimos en el espacio de parámetros (comparar las dos resoluciones simuladas en la Fig. 4.17). Existen arreglos experimentales de alta resolución en la región visible que pueden resolver estructuras espectrales con una resolución mejor que 0.02 cm^{-1} (espectrógrafo doble Sopra de 2 m), mientras que un tandem Fabry-Perot/monocromador puede alcanzar resoluciones de hasta 0.005 cm^{-1} [53, 137], que permitirían sondear los detalles necesarios de los espectros. El segundo punto para resolver el problema inverso es la selección del modelo. El modelo fotoelástico en la forma simplificada e implementada en la ec. 2.36 resulta no ser válido cerca de las resonancias electrónicas. Es sabido que las constantes fotoelásticas son fuertemente dependientes de la energía. Además, estudios recientes demostraron que usar un perfil constante dentro de cada capa no es una buena aproximación para reproducir las intensidades de los picos [71, 138].

En este apartado se mostró cual es la motivación para el uso de técnicas de dispersión Raman para la solución del problema inverso, y cuáles son las actuales limitaciones tanto a nivel experimental como teórico que requieren nuevas investigaciones y desarrollos. En la próxima sección se presentan los resultados experimentales y simulaciones de dispersión Raman, usando diferentes geometrías, y con una resolución de 0.4 cm^{-1} , de donde puede obtenerse directamente información acerca de las excitaciones acústicas en los dispositivos aperiódicos.

4.2.3. Caracterización Raman de dispositivos fonónicos

Se realizaron experimentos de dispersión Raman sobre las tres muestras crecidas, en tres geometrías diferentes: FS y BS incidiendo tanto del lado de la muestra como del lado del sustrato. Los experimentos se realizaron a temperatura ambiente usando la línea 514.5 nm de un láser de Ar-Kr. Los espectros fueron analizados usando un espectrómetro Jobin-Yvon T64000, equipado con una CCD refrigerada por N_2 líquido, en los modos sustractivo (1.2 cm^{-1}) y aditivo (resolución típica de 0.4 cm^{-1}). Los espectros fueron modelados considerando una interacción fotoelástica (veáse ec. 2.36) [2]. Para los valores de las constantes fotoelásticas, densidad y velocidad del sonido del GaAs y del AlAs se utilizaron valores publicados anteriormente [135, 136].

Para realizar los experimentos de dispersión Raman en FS y BS desde el lado del sustrato, es necesario remover el sustrato de GaAs. La preparación de las muestras para realizar estos experimentos consistió primero en un pulido mecánico del sustrato hasta lograr un espesor aproximado de 70-130 μm . La muestra se monta sobre una placa de zafiro con cianoacrilato. El resto del sustrato se remueve usando una solución química que ataca el sustrato de GaAs y no el AlAs. La solución es una mezcla de peróxido de hidrógeno concentrado al 30 %, con hidróxido de amonio concentrado al 30 %. Para mayores detalles puede consultarse el Apéndice B. El ataque químico se detiene al alcanzar las primeras capas de AlAs, dejando una superficie limpia y plana, con la muestra prácticamente inalterada.

La Fig. 4.18 muestra los espectros de dispersión Raman calculados (T) y medidos (M) del espejo de banda ancha en modo aditivo. Asimismo, se incluye una convolución

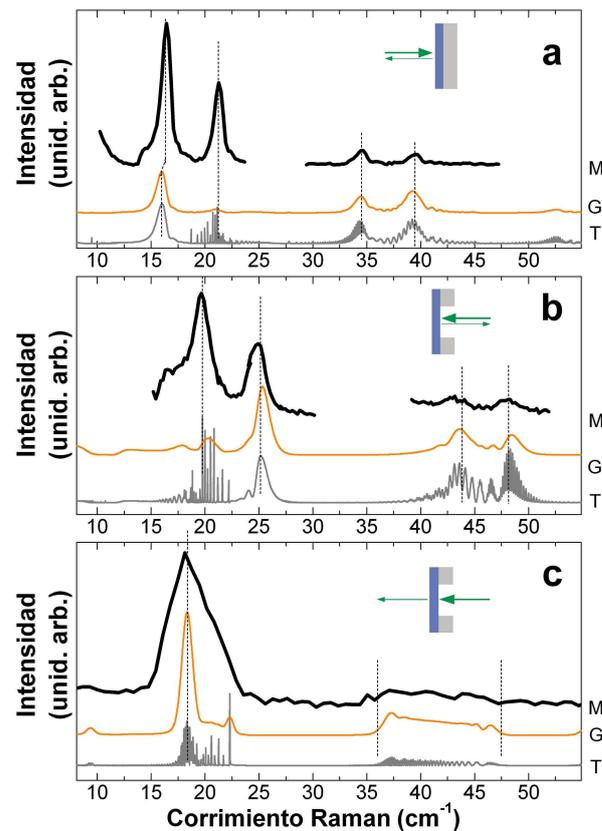


Figura 4.18: Espectros Raman del espejo de banda ancha usando diferentes geometrías: (a) y (b) corresponden a los espectros Raman BS desde distintos lados de la muestra, mientras que (c) corresponde al FS. T, G, y M indican los espectros simulados con el modelo fotoelástico, las simulaciones convolucionadas con una distribución Gaussiana para tener en cuenta la resolución experimental, y los espectros medidos en modo aditivo, respectivamente.

Gaussiana de la curva calculada (G) para tener en cuenta los efectos de la resolución experimental limitada. El panel a (b) corresponde a los espectros Raman BS medidos desde el lado de la muestra (sustrato). Con líneas punteadas se indica una posible asignación de los picos. Debido a la absorción de la luz, los espectros BS son muy similares a los obtenidos con superredes periódicas, es decir, una serie de dobletes cerca del centro de la zona de Brillouin. El espejo de banda ancha tiene un gradiente constante en los espesores de las capas, por lo tanto, el espectro tomado desde el lado del sustrato debería ser similar al obtenido desde el lado de la muestra, pero con un claro corrimiento en la posición de los picos, reflejando la variación en los anchos de las capas. La determinación del corrimiento de los picos es una indicación directa de las posibles diferencias entre los valores nominales y los valores reales de las variables de ajuste (espesores, velocidades del sonido, etc.). Comparando los espectros medidos desde ambos lados de la muestra se determina un corrimiento de aproximadamente 5 cm^{-1} , en total acuerdo con el gradiente nominal con el que fue diseñada la muestra. En la Fig. 4.18c se muestra el espectro Raman tomado en la configuración FS. En este caso, el espectro es sencillo de analizar: en la región alrededor

de 19 cm^{-1} se observa un pico ancho, mientras que en la región $35\text{-}45 \text{ cm}^{-1}$ aparece una estructura con una señal prácticamente constante. La señal constante da cuenta de la variación en los espesores de las capas, de manera similar a los resultados obtenidos en difracción de rayos X. Es remarcable el acuerdo entre los datos experimentales y simulados. Hay, sin embargo, algunos detalles en los que las diferencias son claras; por ejemplo, en la Fig. 4.18a, la diferencia entre amplitudes relativas en los picos alrededor de 18 cm^{-1} .

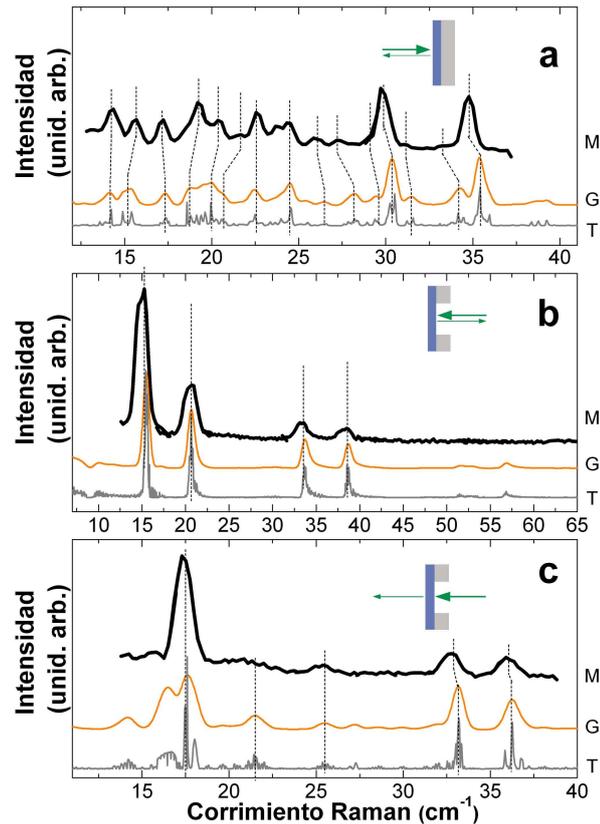


Figura 4.19: Espectros Raman del filtro de color usando diferentes geometrías: (a) y (b) corresponden a los espectro Raman BS desde distintos lados de la muestra, mientras que (c) corresponde al FS. T, G, y M indican los espectro simulados con el modelo fotoelástico, las simulaciones convolucionada con una distribución Gaussiana para tener en cuenta la resolución experimental, y los espectros medidos en modo aditivo, respectivamente.

La Fig. 4.19 muestra los espectros Raman correspondientes al filtro de color. El panel a de la Fig. 4.19 muestra un muy buen acuerdo, a pesar de no ser perfecto, entre las mediciones (M) y las simulaciones (G). Se puede observar un espectro muy rico, donde una variedad de picos se puede distinguir claramente en todo el rango de energías mostrado. La curva T muestra que algunos detalles de alta resolución permanecen ocultos en los espectros experimentales. Como se indicó en la Sec. 4.1.5, la parte trasera del filtro de color está dominada por un arreglo casi periódico de capas, derivado de la optimización del filtro de borde F_A . Debido a la resolución de trabajo limitada del espectrómetro, y a la regularidad de esta parte de la muestra, se espera obtener el espectro de una superred periódica, con

estructuras de alta resolución generadas por el pequeño apartamiento de la periodicidad. En los espectros mostrados en la Fig. 4.19b, se pueden observar hasta 3 órdenes de fonones replegados. Debe observarse el contraste con los espectros BS tomados del otro lado de la muestra (Fig. 4.19a), donde no se puede identificar ningún doblete asociado a la superred. El pico intenso a $\sim 18 \text{ cm}^{-1}$ en la Fig. 4.19c, tomado en FS, está relacionado con la parte regular de la muestra, mientras que el resto de los picos corresponden al conjunto completo de capas que forman la estructura. A pesar del excelente acuerdo que puede notarse, existen algunas diferencias en las posiciones y en las intensidades relativas de los picos. El espectro FS contiene información sobre la muestra completa; sin embargo, el espectro Raman BS tomado desde el lado de la muestra posee una estructura de picos mucho más rica que podría ser más sensible a los cambios de espesores de la parte desordenada de la muestra.

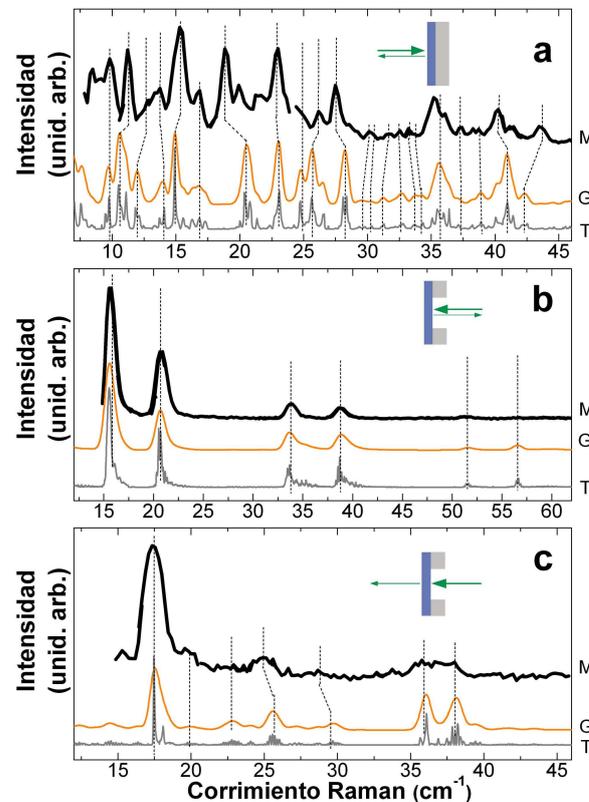


Figura 4.20: Espectros Raman del filtro de borde usando diferentes geometrías: (a) y (b) corresponden a los espectros Raman BS desde distintos lados de la muestra, mientras que (c) corresponde al FS. T, G, y M indican los espectros simulados con el modelo fotoelástico, las simulaciones convolucionadas con una distribución Gaussiana para tener en cuenta la resolución experimental, y los espectros medidos en modo aditivo, respectivamente.

El último dispositivo medido es el filtro de borde. Los espectros Raman se muestran en la Fig. 4.20. Para esta estructura, los cálculos reproducen prácticamente todos los detalles de los espectros experimentales, y las intensidades relativas entre los mismos. Debe notarse una vez más, la diferencia entre el espectro Raman BS tomado desde el lado de la mues-

tra (Fig. 4.20a) con los correspondientes espectros de las otras dos muestras (Fig. 4.18a y 4.19a). Como en el caso del filtro de color, el espectro BS medido desde el lado del sustrato presenta una serie de dobletes relacionados con la mitad cuasi-periódica de la muestra. Son evidentes en los espectros de los filtros de borde y de color los fuertes efectos de la absorción de la luz: los espectros Raman BS medidos desde los dos lados de las muestras son completamente diferentes. En el espectro FS se puede observar un pico principal intenso originado en la parte más regular de la muestra.

4.3. Transmisión de fonones acústicos en filtros optimizados

Las nanocavidades acústicas, los espejos de fonones y los filtros aperiódicos de hipersonido son las estructuras básicas para el diseño y construcción de dispositivos nanofonónicos complejos basados en apilamientos de dos materiales. La caracterización realizada hasta aquí ha sido indirecta a través de HRXRD, PL y Raman. Recientemente se presentaron algunos esquemas basados en técnicas de acústica de picosegundos que permiten evaluar directamente la transmisión a través de un dispositivo de estas características [88, 91]. En particular, como se demostró en el Cap. 3, el uso de transductores metálicos a ambos lados del sustrato permite la realización de experimentos de transmisión de fonones acústicos de hasta ~ 250 GHz (~ 8.34 cm $^{-1}$). Todos los dispositivos estudiados en las secciones anteriores estaban optimizados en el rango ~ 650 GHz.

En esta sección se discuten alternativas para el diseño de filtros fonónicos optimizados para el rango GHz-THz, y se presentan los resultados experimentales de transmisión de hipersonido a través de un espejo de banda ancha y de un filtro de color. Asimismo se comparan estos resultados con simulaciones del desplazamiento de la superficie que permiten explicar las principales características espectrales.

4.3.1. Diseño y caracterización de las muestras

En este apartado se describirá el diseño y proceso de optimización de dos filtros para fonones acústicos en la banda alrededor de 180 GHz. Se presentan los resultados sobre un espejo de banda ancha y un filtro de color para ilustrar los criterios de diseño específicos para los experimentos a realizarse.

El primer dispositivo diseñado consiste en un espejo de banda ancha, centrado en 165 GHz. El espejo fue concebido como una superposición de bicapas GaAs/AlAs ($\lambda/4, \lambda/4$). Esta relación de espesores maximiza el primer minigap de borde de la minizona de Brillouin y permite obtener una zona de alta reflectividad dos veces más ancha que la obtenida con una estructura optimizada para el primer minigap de centro de la minizona de Brillouin ($3\lambda/4, \lambda/4$) en la misma frecuencia. Asimismo, este dispositivo tiene un espesor total considerablemente menor respecto de un espejo de banda ancha diseñado en centro de zona, y por lo tanto esto también reduce el tiempo de crecimiento de la estructura. Esto es particularmente crítico aquí, donde, por trabajar en el rango de los 160 GHz, en lugar de 650 GHz, los espesores serían aproximadamente cuatro veces más grandes que para los dispositivos estudiados en las secciones anteriores. El espejo diseñado consiste en 100 capas

de GaAs y AlAs alternadas, con espesores que varían entre 6.22 y 9.98 nm. Se estableció un gradiente de 1 GHz/bicapa, resultando en bicapas centradas entre 140 y 190 GHz. El panel superior de la Fig. 4.21 muestra la reflectividad calculada del espejo de banda ancha, y en el panel inferior se presenta la distribución de espesores nominales. La curva de reflectividad está caracterizada por una banda de alta reflectividad de aproximadamente 40 GHz, centrada a 165 GHz. La reflectividad mínima a lo largo de esta banda es del 98 %.

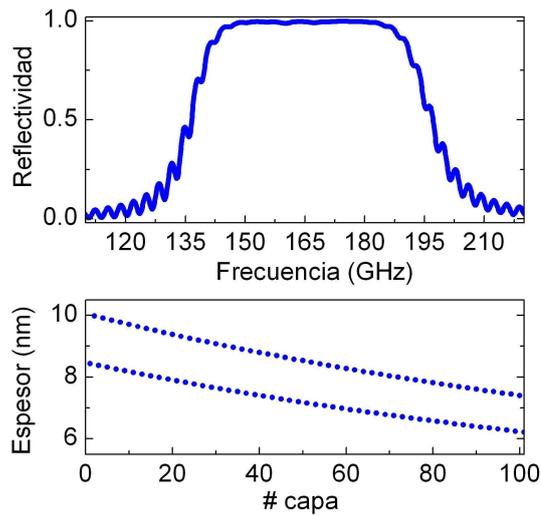


Figura 4.21: Panel superior: reflectividad acústica del espejo de banda ancha de 100 capas de GaAs/AlAs. Panel inferior: distribución de los espesores del dispositivo aperiódico.

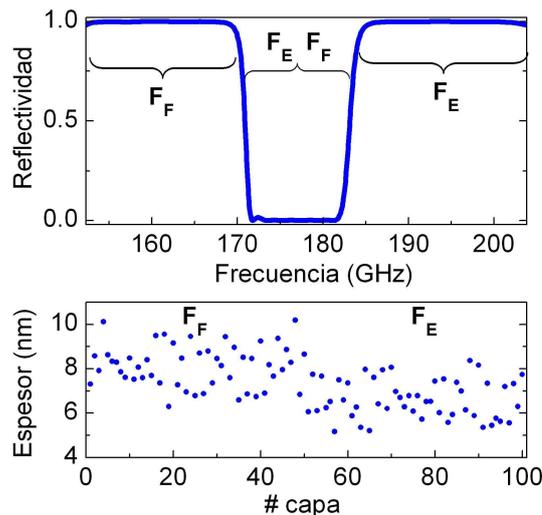


Figura 4.22: Panel superior: reflectividad acústica de un arreglo optimizado como filtro de color de 100 capas de GaAs/AlAs. Panel inferior: distribución de los espesores del dispositivo optimizado. F_E y F_F indican las bandas frecuenciales y posiciones en la muestra asociadas a los filtros de borde usados como semilla en el proceso de optimización.

El segundo dispositivo optimizado es un filtro de color. El diseño del filtro de color se realizó en dos etapas, de forma similar a la descrita en la Sec. 4.1.5. Las semillas intermedias F_E y F_F consisten en dos filtros de borde desplazados y opuestos (un pasa-bajos y un pasa-altos con frecuencias de corte diferentes). Para la optimización de estos dos filtros se utilizaron como semillas dos superredes de 25 períodos con los minigaps centrados a frecuencias apropiadas. Con el fin de maximizar las bandas de alta reflectividad, las superredes iniciales presentan una relación de espesores ($\lambda/4, \lambda/4$). El panel superior de la Fig. 4.22 muestra la reflectividad acústica calculada para el filtro de color, en el panel inferior se puede observar la distribución de espesores optimizada en la estructura. Este filtro de color posee una banda de trabajo entre ~ 152.3 y 203.8 GHz. La banda pasante es de ~ 12.58 GHz de ancho, y tiene una transmisión mayor al 99.985 %, mientras que en las bandas de alta reflectividad es menor al 2 %.

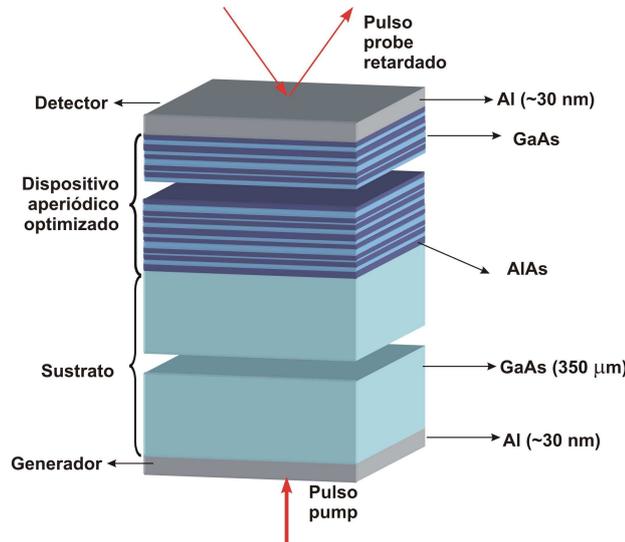


Figura 4.23: Esquema de las estructuras optimizadas, con los transductores de Al depositados a ambos lados de la muestra. El pulso pump incide sobre la película delgada de Al del lado del sustrato, y el probe sobre la película de Al depositada del lado de la muestra.

Las muestras estudiadas consisten en multicapas de GaAs/AlAs crecidas por epitaxia de haces moleculares con la distribución de espesores presentadas en las Figs. 4.21 y 4.22. Las estructuras fueron crecidas sobre sustratos de GaAs orientados en la dirección (001) doblemente pulidos. Se realizaron experimentos de difracción de rayos X de alta resolución para caracterizar estructuralmente las muestras, obteniéndose un buen acuerdo con las simulaciones realizadas usando los espesores nominales. En la Fig. 4.23 se muestra un esquema de las muestras, junto con la geometría de medición utilizada. Dos películas de aluminio de ~ 30 nm de espesor se depositaron sobre la muestra y el sustrato para actuar como detector y generador de fonones coherentes, respectivamente.

4.3.2. Experimentos de transmisión acústica en filtros optimizados

Los experimentos de transmisión de hipersonido presentados en esta sección son semejantes a los estudiados en la Sec. 3.1.2. Estos experimentos se realizaron a 15 K para minimizar la atenuación acústica en el sustrato de GaAs. Los pulsos pump y probe inciden desde lados opuestos del sustrato sobre las películas de Al. El pump se focaliza sobre la película de Al que actúa como generador de fonones coherentes (lado del sustrato). El probe se focaliza en la segunda película de Al que actúa como detector de fonones coherentes (lado de la muestra). Los fonones generados en la primera película de Al que atraviesan el sustrato y el dispositivo optimizado modulan las propiedades ópticas de la segunda película, y modifican su reflectividad que es sondeada por el probe. Realizando una transformada de Fourier de la señal temporal medida es posible determinar cuáles son las frecuencias de los fonones que llegan a la película metálica, filtrados por el dispositivo aperiódico. Se denominará espectro de transmisión al resultado de esta transformada de Fourier.

Las mediciones fueron realizadas con una longitud de onda del láser $\lambda=750$ nm, utilizando tanto la configuración de interferometría como la de reflectometría, resultando en similares espectros de transmisión. Dadas las características del experimento, y al igual que en el Cap. 3, se considera que el espectro de transmisión está relacionado directamente con el desplazamiento de la superficie cuando incide un pulso “blanco” desde el sustrato.

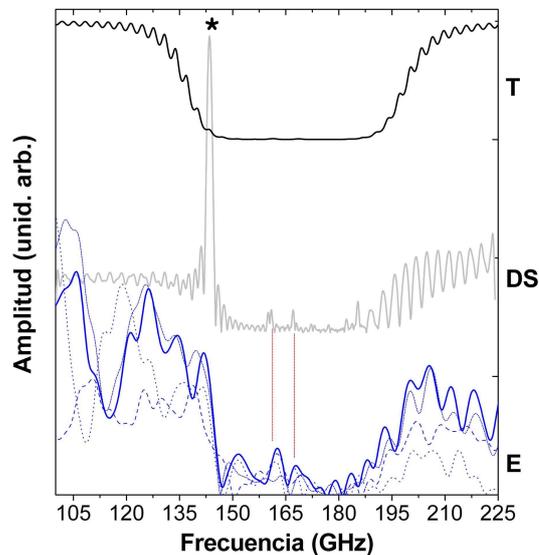


Figura 4.24: Transmisión de fonones acústicos a través de un espejo de banda ancha. DS indica el espectro del desplazamiento de superficie simulado. E señala el espectro experimental de transmisión de fonones. Las líneas verticales indican modos localizados en la estructura. Con un asterisco (*) se identifica el modo confinado en la película de aluminio. Como referencia se incluye el cálculo de transmisión (T) para el dispositivo inmerso en un medio de GaAs.

El primer dispositivo estudiado en experimentos de transmisión es el espejo de banda ancha. En la Fig. 4.24 se muestran espectros de transmisión medidos (E) con diferentes potencias de pump, la simulación del desplazamiento de superficie (DS) y la transmisión

calculada (T) a través del dispositivo considerando que está inmerso en un medio de GaAs. Para realizar la simulación del desplazamiento de superficie se consideró un pulso blanco que incide desde el sustrato, y se calculó $u(0, t)$. Tomando una ventana temporal de 750 ps, se realizó la transformada de Fourier para obtener la curva DS. La curva T de transmisión del espejo de banda ancha está caracterizada por la banda prohibida, y oscilaciones laterales. Comparando las curvas T y DS puede notarse la presencia de un pico intenso a ~ 143 GHz indicado con un asterisco (*). Este pico corresponde a un modo localizado en la película de aluminio. Asimismo, en DS pueden observarse dos picos que se ubican en la banda de alta reflectividad. Estos picos están asociados a modos confinados entre la superficie de la muestra y las zonas de alta reflectividad espacialmente localizadas dentro de la estructura: debe recordarse que el espejo de banda ancha fue diseñado como la superposición de BRs desplazados en energía en función de su posición dentro del dispositivo. En todas las curvas experimentales se puede distinguir claramente la banda de alta reflectividad. Existen, sin embargo, algunas estructuras anchas de baja intensidad dentro de la banda de alta reflectividad que podrían asociarse con los modos confinados (indicados con líneas rojas). El modo confinado (*) también puede observarse en las curvas experimentales, pero con una relación de intensidades diferente respecto al resto de los picos presentes en el espectro. Las oscilaciones laterales observadas en E son parcialmente reproducidas por las simulaciones. Debe tenerse en cuenta que los espectros experimentales están modulados por el espectro de fonones incidentes (que no es precisamente “blanco”), como puede notarse al comparar los espectros tomados con diferentes potencias (y consecuentemente diferentes espectros incidentes). Teniendo en cuenta la posición del pico (*) se determinó que el espesor real de Al de esta muestra es de 31.5 nm. El resto de las estructuras en el espectro permanecen prácticamente invariantes ante modificaciones del espesor de la película metálica.

El segundo dispositivo sobre el que se hicieron experimentos de transmisión de fonones acústicos es el filtro de color. En la Fig. 4.25 se puede observar el espectro de transmisión medido (E), junto con la simulación del desplazamiento de superficie (DS) considerando un pulso blanco que incide desde el sustrato. Se incluye la curva de transmisión calculada (T) del dispositivo considerando que está inmerso en un medio de GaAs, donde se pueden distinguir la banda de transmisión central, las dos bandas de alta reflectividad laterales y oscilaciones fuera de la banda de frecuencias optimizada. Del espectro experimental debe notarse que: i) la banda pasante del filtro de color está perfectamente definida. ii) se pueden distinguir claramente las dos bandas de alta reflectividad, salvo por el pico indicado con un asterisco (*). iii) existen oscilaciones laterales que son parcialmente reproducidas por las simulaciones. iv) existe un modo localizado en la película de aluminio, indicado con un asterisco, debido a efectos de confinamiento entre la interfaz aire/Al y la parte F_F de la estructura. v) en la simulación se pueden distinguir tres modos confinados en la estructura, localizados entre la superficie y la parte F_E de la muestra (indicados con líneas verticales rojas). Se determinó que el espesor de la película de Al utilizada como sensor que mejor ajusta los resultados experimentales es 28.5 nm, determinado por la posición del pico indicado con un asterisco.

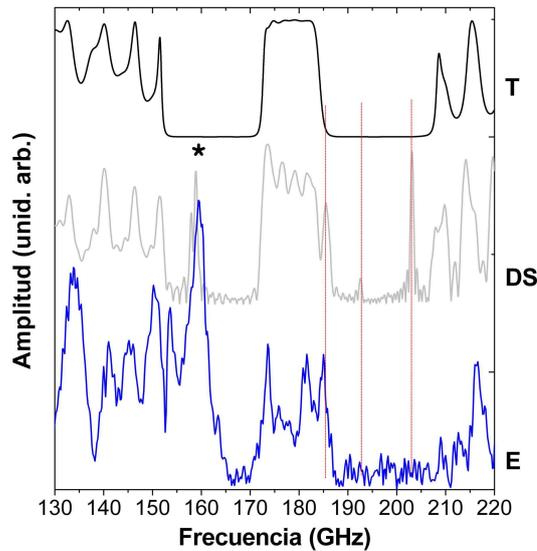


Figura 4.25: Transmisión de fonones acústicos a través de un filtro de color. DS indica el espectro del desplazamiento de superficie simulado. E señala el espectro experimental de transmisión de fonones. Las líneas verticales indican modos localizados en la estructura. Con un asterisco (*) se identifica el modo confinado en la película de aluminio. Como referencia se incluye el cálculo de transmisión (T) para el dispositivo inmerso en un medio de GaAs.

4.4. Conclusiones

En este capítulo se demostró que es posible extender el concepto de filtros aperiódicos extensamente aplicado en óptica al campo de la fonónica en el rango GHz-THz para diseñar dispositivos como filtros de borde, o espejos de banda ancha. Se presentaron las técnicas de optimización que permiten obtener los filtros aperiódicos, y las estrategias para lograr los objetivos buscados. En los casos estudiados se evidenció la importancia en la elección de semillas adecuadas para acelerar el proceso de convergencia, y para evitar que el algoritmo de optimización converja a un mínimo local.

La caracterización electrónica de las muestras, por fotoluminiscencia, es sólo cualitativa, debido a las limitaciones en las simulaciones relacionadas con la termalización tanto dentro como entre los pozos cuánticos. La caracterización por HRXRD permite obtener datos estructurales, pero no revela ningún tipo de información respecto a las vibraciones del sistema. Por otra parte, los resultados de HRXRD validaron el uso de los valores nominales de los espesores en las simulaciones de dispersión Raman. Finalmente se realizó una caracterización de las muestras por dispersión Raman, que sondea los estados vibracionales de los dispositivos, aunque sigue siendo una caracterización indirecta del funcionamiento del dispositivo como filtro. El acuerdo entre los espectros Raman medidos y calculados es muy bueno, confirmando la hipótesis de que es una herramienta potente de caracterización de nanodispositivos acústicos en el rango THz. La disponibilidad de arreglos experimentales de ultra-alta resolución junto con modelos y parámetros más precisos podrían ser usados directamente para caracterizar espectralmente detalles de alta resolución de los dispositivos

fonónicos.

Uno de los objetivos del estudio de los dispositivos a través de experimentos de dispersión Raman fue resolver el problema inverso, utilizando diferentes geometrías para reducir el espacio de soluciones. Una alternativa consiste en utilizar diferentes energías de excitación donde la absorción de la luz sea despreciable. Sin embargo, no se pudieron realizar experimentos de dispersión Raman en el infrarrojo cercano debido a las bajas secciones eficaces, y a las altas señales de fotoluminiscencia. Se vio también que el acceso a un modelo completo y confiable para la sección eficaz Raman constituye un punto crítico para la implementación de la técnica en un esquema de solución del problema inverso.

Finalmente, se han realizado también experimentos de transmisión de fonones acústicos sobre dos filtros optimizados en el rango de los 160 GHz, en lugar de los 650 GHz utilizados para los dispositivos estudiados en experimentos de dispersión Raman. En estos experimentos se ha demostrado directamente la *performance* de estos dispositivos aperiódicos. Asimismo se evidenció la importancia de las condiciones de contorno, en particular de la superficie libre.

Tanto las rutinas presentadas como los dispositivos estudiados representan los primeros pasos en el desarrollo de dispositivos fonónicos más complejos en el rango GHz-THz.

Capítulo 5

Acústica de picosegundos en microcavidades ópticas

Una cavidad óptica confina espacial y espectralmente el campo electromagnético, induciendo fuertes cambios en la interacción radiación-materia [17, 23]. En el caso de las microcavidades ópticas semiconductoras, dos reflectores distribuidos de Bragg (DBRs¹) encierran un separador óptico. Las características de amplificación y confinamiento de la luz son determinadas por la selección de materiales, espesores, y número de períodos que forman cada DBR y el espaciador óptico. Las microcavidades ópticas han sido objeto de investigación muy activa durante los últimos diez años, y han sido utilizadas para estudiar, por ejemplo, la modificación de la vida media fotónica [18], oscilaciones paramétricas [17], la condensación de Bose-Einstein de polaritones de cavidad [19, 20], el láser de polaritones [21, 22], y la amplificación de señales Raman [23], para nombrar algunas de sus aplicaciones. El objetivo de este trabajo ha sido demostrar el uso del confinamiento óptico para la amplificación de la generación y detección de fonones coherentes.

Con el fin de caracterizar óptica y vibracionalmente las estructuras, e introducir los conceptos de amplificación por confinamiento óptico, se presentan primero los resultados experimentales de dispersión Raman en una microcavidad. Estos experimentos se realizaron en condición de doble resonancia óptica, y en resonancia con un estado electrónico confinado en un pozo cuántico inmerso dentro del espaciador óptico. Teniendo en cuenta la relación entre los procesos Raman y los procesos de generación y detección de fonones acústicos coherentes con pulsos ultra-cortos, se extienden los conceptos de resonancias ópticas y electrónicas al dominio temporal. Se analiza la influencia del confinamiento de los fotones en los procesos de generación y detección de hipersonido coherente, tanto desde el punto de vista de las reglas de selección como de la amplificación de las señales detectadas. Se presentan los resultados de los estudios experimentales de dos microcavidades, y se determinan las condiciones óptimas de amplificación de señales en sistemas con confinamiento fotónico.

Este capítulo se encuentra dividido en cuatro secciones principales: en la Sec. 1 se presentan los conceptos fundamentales de una cavidad de fotones y como se modifica la

¹del inglés Distributed Bragg Reflector

distribución de campo eléctrico en su interior debido a los efectos de confinamiento. La Sec. 2 se focaliza en la dispersión Raman resonante en una microcavidad óptica. La generación y detección de fonones acústicos coherentes en microcavidades ópticas se analizará en detalle en la Sec. 3. Finalmente, en la Sec. 4 se presentarán las conclusiones parciales correspondientes al presente capítulo. Todas las muestras estudiadas fueron crecidas por el grupo de A. Lemaître en el Laboratoire de Photonique et des Nanostructures, Centre National de la Recherche Scientifique, Marcoussis, Francia.

5.1. Ingeniería de campos electromagnéticos

En esta sección se describen las características principales de espejos y cavidades ópticas. Teniendo en cuenta, una vez más, el paralelismo entre luz e hipersonido, todas las ideas presentadas en el Cap. 1 en el contexto de los cristales fonónicos unidimensionales, pueden ser extendidas al ámbito de la fotónica. De hecho, en muchos casos, los desarrollos y descubrimientos en nanofonónica fueron inspirados por sus equivalentes fotónicos [3].

Las multicapas de interferencia óptica han sido estudiadas y utilizadas en numerosas aplicaciones tecnológicas [12, 13]. Un caso particular son los espejos dieléctricos formados por un apilamiento periódico de dos materiales con diferentes índices de refracción y con espesores del orden de la longitud de onda de la luz incidente. La interferencia que se produce entre las ondas reflejadas y transmitidas en las múltiples interfaces establece regiones espectrales en donde la interferencia es destructiva y la luz no puede propagarse dentro de la estructura, de manera totalmente análoga a lo que sucede con el sonido en estructuras fonónicas. En la Fig. 5.1 se muestra el esquema de un espejo dieléctrico, formado por una sucesión periódica de dos materiales. Es importante notar que un DBR debe ser diseñado para utilizarse en la región de transparencia de los materiales elegidos, y que a diferencia de los sistemas nanofonónicos, el aire puede ser uno de los materiales constituyentes. En el presente trabajo, los espejos ópticos están formados por capas de AlAs y $\text{Al}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{As}$.

En el caso de los DBRs ópticos, no existe ninguna limitación práctica sobre qué minigap se utilizará como espejo de fotones. En las estructuras aquí estudiadas, siempre se optimizó el primer minigap del borde de la zona de Brillouin. La relación de espesores que maximiza la región de alta reflectividad o stop-band óptico está dada por [23]:

$$d_1 = \lambda_v / (4n_1) \quad (5.1)$$

$$d_2 = \lambda_v / (4n_2) \quad (5.2)$$



Figura 5.1: Esquema de la estructura de un DBR óptico.

donde λ_v es la longitud de onda de la luz en el vacío, y d_1 y d_2 son los espesores de los materiales con índices de refracción n_1 y n_2 respectivamente.

En la Fig. 5.2 se muestra el cálculo de la reflectividad de un DBR óptico para un rango de longitudes de onda comprendido entre 600 y 1100 nm. La estructura está formada por 20 períodos de 71.79/61.95 nm de AlAs/Al_{0.2}Ga_{0.8}As, y presenta un stop-band centrado en una longitud de onda $\lambda=850$ nm. Se puede observar la presencia de una banda de alta reflectividad entre 800 y 900 nm con oscilaciones a ambos lados de la misma. Debido a la diferencia de índices de refracción entre el aire y el sustrato (GaAs), los mínimos de las oscilaciones no alcanzan una reflectividad nula. La línea gris horizontal indica la reflectividad de un sustrato de GaAs. La región de alta reflectividad será utilizada como espejo de fotones.

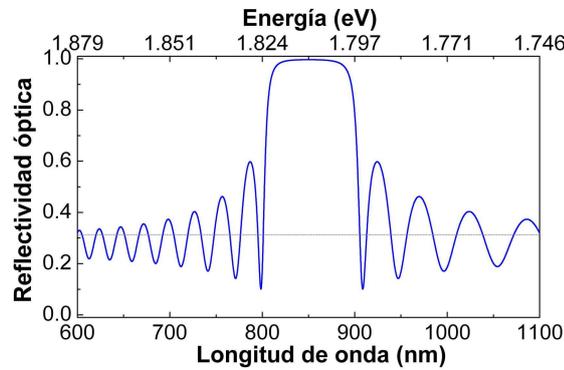


Figura 5.2: Cálculo de reflectividad de un DBR óptico. La estructura está formada por 20 períodos de AlAs/Al_{0.2}Ga_{0.8}As optimizados para una longitud de onda $\lambda=850$ nm.

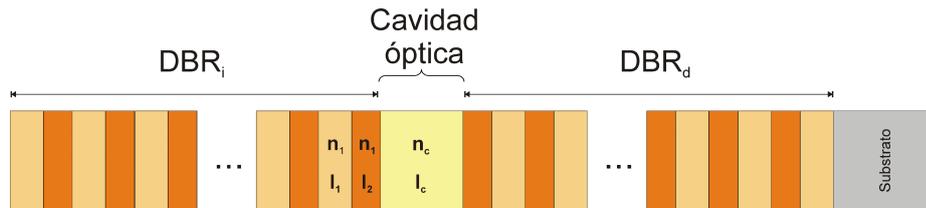


Figura 5.3: Esquema de una cavidad óptica, formada por dos DBRs encerrando un espaciador. Los parámetros relevantes son los espesores y los índices de refracción en cada una de las capas.

El esquema de una cavidad óptica formada por dos reflectores de Bragg encerrando un espaciador óptico se muestra en la Fig. 5.3. Una cavidad óptica permite modificar la densidad de estados de los fotones y la distribución espacial del campo eléctrico, y obtener una fuerte direccionalidad en la emisión y absorción de luz en la estructura [17, 139, 140]. La energía del modo óptico confinado ω tiene una dispersión con el vector de onda paralelo a la superficie de la cavidad $k_{||}$ dada por:

$$\omega(k_{||}) = \sqrt{\omega_0^2 + (ck_{||}/n_c)^2} \quad (5.3)$$

donde ω_0 es la energía del modo para una incidencia normal. En la Fig. 5.4 se muestra la dependencia de la reflectividad óptica de una cavidad con el ángulo de incidencia. La estructura está formada por dos DBRs encerrando un espaciador óptico de AlGaAs de 247.8 nm de espesor. El DBR superior (inferior) está formado por 7 (10) períodos de 61.95/71.79 nm de AlGaAs/AlAs. Estos valores corresponden a una relación de espesores ($\lambda/4, \lambda/4$), para $\lambda=850$ nm. Se puede observar que a medida que aumenta el ángulo, la longitud de onda del modo disminuye.

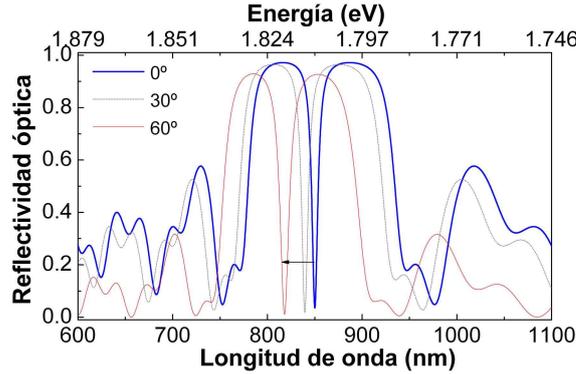


Figura 5.4: Reflectividad óptica de una cavidad para distintos ángulos de incidencia. A medida que aumenta el ángulo de incidencia aumenta la energía del modo de cavidad [23].

En la Fig. 5.5 se muestra la distribución de la intensidad del campo eléctrico para la misma estructura, incidiendo normalmente y para una longitud de onda $\lambda = 850$ nm, correspondiente al modo de cavidad. En el panel superior se muestra el perfil de índices de refracción para poder realizar una identificación espacial de cada una de las capas que forman la microcavidad óptica. El campo eléctrico se encuentra confinado y amplificado dentro de la cavidad, y presenta un decaimiento exponencial en los DBRs.

El factor de amplificación (~ 27 en este caso) está determinado por la reflectividad óptica de los espejos que forman la estructura. La *finesse* f está dada por:

$$f = Q \frac{REL}{\nu_0} \quad (5.4)$$

donde Q , REL y ν_0 son el factor de calidad, el rango espectral libre y la frecuencia de resonancia, respectivamente. El REL es la distancia entre los modos del resonador. El factor de calidad Q se define como:

$$Q = \frac{\nu_0}{\delta\nu} \quad (5.5)$$

donde $\delta\nu$ es el ancho a media altura de la resonancia. Tanto Q como f determinan las características de confinamiento y amplificación de una cavidad.

Como se mostrará en la siguiente sección, en un experimento de dispersión Raman es posible elegir los ángulos de incidencia y colección de manera tal que tanto el campo eléctrico incidente como el dispersado estén sintonizados con el modo de la cavidad óptica.

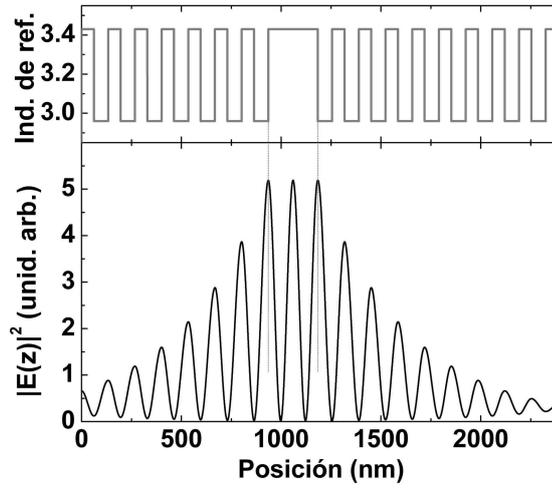


Figura 5.5: $|E(z)|^2$ en función de la posición en la estructura. El campo eléctrico se encuentra amplificado en la región de la cavidad. Se incluye el perfil de índices de refracción para facilitar la localización de los materiales utilizados. Las líneas verticales indican la posición del espaciador.

En condición de resonancia óptica, el campo eléctrico dentro de la cavidad corresponde a un modo estacionario y puede expresarse según:

$$E(z) = a(e^{ikz} + e^{-ikz}). \quad (5.6)$$

Suponiendo que $E_i \approx E_d$, y reemplazando la ec. 5.6 en la ec. 2.36 para el cálculo de la sección eficaz Raman, se obtiene:

$$\sigma(\omega) \propto a^4 \left| \int (2 + e^{i2kz} + e^{-i2kz}) p(z) \frac{\partial u_w(z)}{\partial z} dz \right|^2. \quad (5.7)$$

Puede notarse que en esta expresión existe un factor de proporcionalidad a^4 , es decir que la señal Raman aumenta con $|E|^4$. Cuanto mayor es la *finesse* de la cavidad, mayor es la amplificación del campo eléctrico, y mayor la señal Raman obtenida. Por otra parte, el integrando (I) de la ec. 5.7 puede separarse en

$$(2 + e^{i2kz} + e^{-i2kz}) p(z) \frac{\partial u_w(z)}{\partial z} = I_{BS} + I_{FS}, \quad (5.8)$$

donde I_{BS} y I_{FS} están dados por:

$$I_{BS} \propto a^2 (e^{i2kz} + e^{-i2kz}) p(z) \frac{\partial u_w(z)}{\partial z} \quad (5.9)$$

$$I_{FS} \propto a^2 2p(z) \frac{\partial u_w(z)}{\partial z}. \quad (5.10)$$

De esta manera se vuelve evidente que en experimentos de dispersión Raman, una cavidad óptica permite acceder a modos con $q \sim 0$ (FS) y $q \sim 2k$ (BS) de manera simultánea [141], debido al carácter estacionario del campo electromagnético dentro del

espaciador de la cavidad. Teniendo en cuenta la forma de la ec. 5.8, en las simulaciones es posible discriminar fácilmente las contribuciones BS y FS.

Un resonador para luz y sonido es un dispositivo que combina una nanocavidad acústica y una microcavidad óptica en una única nanoestructura [4]. En este dispositivo, el resonador acústico conforma el espaciador óptico de la microcavidad de luz. Bajo condiciones de resonancia acústica y óptica, el campo electromagnético presenta un máximo en el centro del espaciador acústico, donde la deformación elástica también es máxima. Las características acústicas, ópticas y electrónicas de una cavidad de luz y sonido pueden ser diseñadas para obtener una estructura totalmente optimizada donde las energías de las transiciones electrónicas y de los modos óptico y acústico se encuentran convenientemente localizadas. En los siguientes dos apartados se presentan los estudios experimentales y teóricos de dispersión Raman en condición de doble resonancia óptica, y en resonancia electrónica con un estado confinado en el espaciador de la nanocavidad acústica.

5.2. Dispersión Raman resonante en microcavidades ópticas

En la sección anterior se mostró teóricamente que en experimentos de dispersión Raman en cavidades ópticas, características espectrales normalmente observables en geometrías BS y FS se vuelven simultáneamente observables en un único experimento, debido al carácter estacionario de los fotones dentro de la estructura. La amplificación del campo eléctrico dentro de una microcavidad produce la amplificación de la sección eficaz Raman, que resulta proporcional al cuadrado de la intensidad del campo eléctrico (ver ec. 5.7). En trabajos previos se han estudiado los modos acústicos confinados en una cavidad acústica en experimentos de dispersión Raman, utilizando una cavidad óptica para amplificar las señales [3, 4, 27]. Además del confinamiento óptico, la forma más usual para amplificar señales Raman es a través de resonancias electrónicas. Este tipo de dispersión Raman por fonones acústicos fue estudiado previamente en detalle en superredes semiconductoras [138, 142–146].

En esta sección se estudiará la posibilidad de excitar resonantemente un estado electrónico confinado en el espaciador acústico de un resonador para luz y sonido, de manera tal de obtener una amplificación de los campos óptico y acústico simultáneamente. Se mostrará que esto induce la amplificación de diferentes características espectrales, particularmente del modo acústico confinado. Se presentarán también los resultados de las simulaciones basadas en un modelo fotoelástico para explicar los procesos de amplificación. Estos resultados servirán para comprender los espectros de generación y detección de fonones coherentes en microcavidades que se estudiarán en las siguientes secciones.

5.2.1. Descripción de la muestra

La muestra estudiada consiste en una nanocavidad acústica dentro de una cavidad óptica. En la Fig. 5.6 se muestra un esquema de la estructura. La muestra fue crecida sobre un sustrato GaAs orientado en la dirección (001) por epitaxia de haces moleculares. La nanocavidad está formada por dos superredes de 12 períodos de AlAs/GaAs de 8.2/2.3 nm.

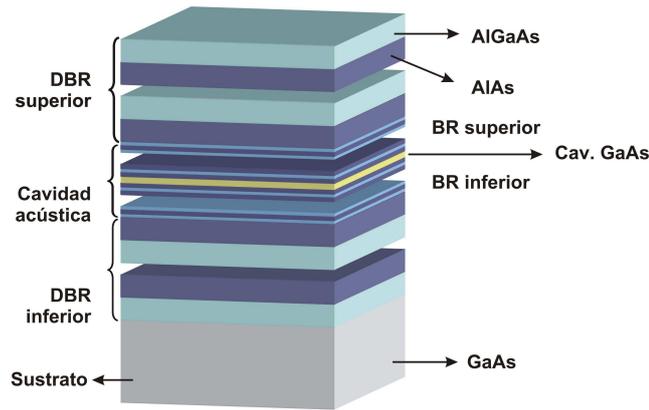


Figura 5.6: Esquema de la estructura del resonador de luz e hipersonido. Una nanocavidad acústica actúa como espaciador del resonador óptico.

Estas dos SRs encierran un espaciador acústico de 4.6 nm de GaAs ($\lambda_s/2$), donde λ_s es la longitud de onda del modo de cavidad. La selección de espesores ($3\lambda_s/4$, $\lambda_s/4$) para los espejos maximiza el primer minigap en el centro de la zona de Brillouin. La energía nominal del modo confinado es de 18 cm^{-1} . El panel superior de la Fig. 5.7 muestra la reflectividad de la cavidad acústica. Se pueden observar seis bandas de alta reflectividad que corresponden a los minigaps acústicos en la relación de dispersión. ZE[n] (ZC[n]) indica el n-ésimo minigap en el centro (borde) de la minizona de Brillouin. En ZC[1] y ZC[3] existe un modo confinado centrado en la región de alta reflectividad, en el resto de los minigaps los modos confinados no se encuentran centrados. El segundo minigap del centro de la zona de Brillouin (ZC[2], a 35 cm^{-1}) está cerrado, y por lo tanto no se observa ninguna región de alta reflectividad ni modo confinado.

El panel inferior de la Fig. 5.8 muestra la distribución del campo fonónico para la energía del modo confinado (curva negra). En el panel superior se incluye el perfil de densidades para facilitar la identificación de los materiales utilizados. Las líneas de puntos verticales delimitan el espaciador de la cavidad acústica. El desplazamiento se encuentra confinado y amplificado dentro de la cavidad, y presenta un decaimiento exponencial en los espejos.

La nanocavidad acústica constituye un espaciador óptico de espesor λ_l , donde λ_l es la longitud de onda del modo óptico confinado en la microcavidad. Los reflectores distribuidos de Bragg están formados por bicapas de $\text{Al}_{0.8}\text{Ga}_{0.2}\text{As}/\text{AlAs}$ de 62.8/72.8 nm. El espejo superior (inferior) está formado por 10 (14) períodos. El número asimétrico de períodos en los espejos ópticos se eligió para compensar la diferencia de reflectividad en las interfaces aire/muestra y muestra/sustrato. La muestra fue crecida con un gradiente de espesores, para poder sintonizar el modo de cavidad con el láser incidente y con los fotones dispersados cambiando la posición sobre la muestra. La resonancia óptica puede también sintonizarse cambiando la energía del láser incidente y el ángulo de incidencia [110, 147].

Debido a los efectos de confinamiento, las transiciones electrónicas en las capas de GaAs que forman los espejos acústicos se encuentran a energías más altas que las correspondientes al espaciador de la nanocavidad. En el panel inferior de la Fig. 5.8, se esquematiza con línea roja el perfil de las energías de transición en la estructura. E_{Cav} y E_{BR} indican

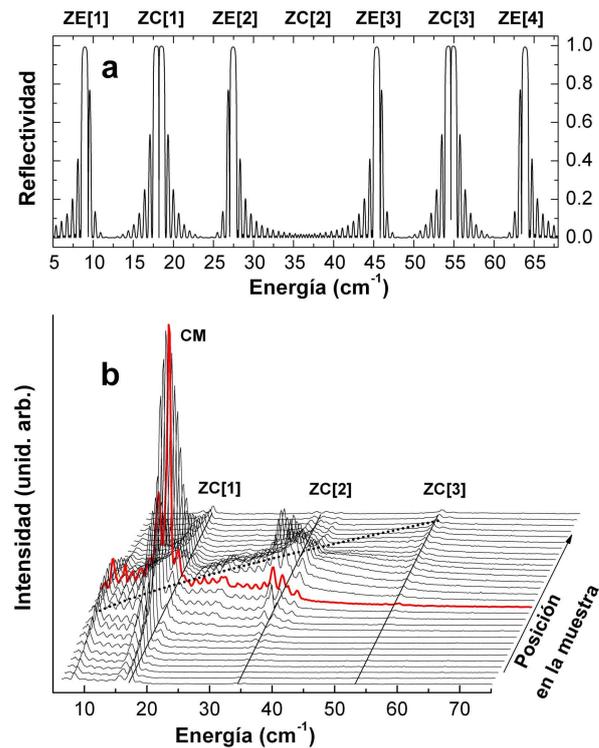


Figura 5.7: Panel a: reflectividad acústica calculada de la nanocavidad fonónica. Panel b: espectros Raman en función de la posición sobre la muestra tomados a temperatura ambiente, con un ángulo de incidencia de aproximadamente 15° y una longitud de onda de 815 nm. Las líneas continuas indican las posiciones de los minigaps acústicos, la línea punteada es una guía para localizar la posición del modo óptico de cavidad. CM, ZC[2] y ZC[3] indican el modo acústico de cavidad en el primer minigap en el centro de zona, y fonones replegados correspondientes al segundo y tercer minigap en el centro de la zona de Brillouin, respectivamente.

las energías de las transiciones electrónicas en el espaciador de la cavidad y en los pozos cuánticos que forman los espejos fonónicos, respectivamente. Los experimentos resueltos en tiempo descritos en este capítulo se realizaron con la energía del láser ubicada entre estas dos energías. La transición electrónica del espaciador acústico se encuentra a 732 nm, y fue determinada por experimentos de fotoluminiscencia realizados a 80 K. Este valor fue confirmado calculando las transiciones electrónicas usando la aproximación de funciones envolventes. Se estima la transición de las capas de GaAs en los espejos acústicos en aproximadamente 650 nm, usando el mismo modelo.

Cambiando la posición sobre la muestra, es posible cambiar la diferencia relativa de energía entre el modo de cavidad, y la transición electrónica en el espaciador acústico. El modo óptico de cavidad es mucho más sensible a la posición sobre la muestra que los niveles electrónicos, que están determinados principalmente por las propiedades del GaAs masivo. Además, la variación absoluta de la energía del modo acústico de cavidad es mucho menor que la variación del modo de la microcavidad óptica, dado que las energías involucradas son mucho menores (la variación a lo largo de la muestra es menor de 1.5 cm^{-1} para el

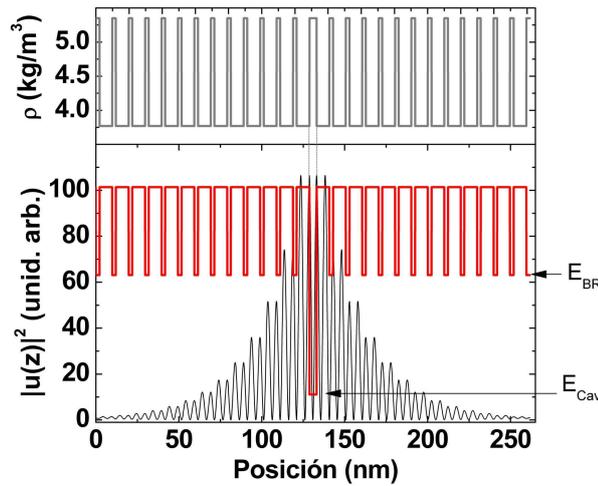


Figura 5.8: Panel inferior: $|u(z)|^2$ en función de la posición en la estructura. Con línea roja se muestra un esquema del perfil de energías de transición en la estructura. E_{Cav} y E_{BR} indican esquemáticamente las energías de transición en el espaciador de la cavidad y en los pozos cuánticos que forman los espejos fonónicos, respectivamente. Panel superior: perfil de densidades de los materiales utilizados. Las líneas verticales indican la posición del espaciador.

modo de 30.0 cm^{-1}). Todos estos conceptos de ingeniería de los estados ópticos, acústicos y electrónicos son válidos también para el contexto de la generación coherente de fonones acústicos.

5.2.2. Doble resonancia óptica

En la Fig 5.9 se muestra un esquema de la geometría utilizada en los experimentos de dispersión Raman en condición de doble resonancia óptica (DRO). Mediante los ángulos ϕ_i y ϕ_s es posible sintonizar el modo de la cavidad para las energías de la luz incidente (láser) y dispersada (de menor energía en experimentos Stokes). En los experimentos de dispersión Raman en cavidades de luz e hipersonido presentados en este trabajo, la luz dispersada se colecta en la dirección normal a la superficie de la muestra. Para lograr la condición de DRO, es de suma importancia el ángulo que forma el láser incidente con la cara de la muestra. Mediante un posicionador xy y un goniómetro es posible regular la posición del espejo que determina el ángulo de incidencia sobre la superficie de la cavidad óptica. La lente de focalización también se encuentra montada sobre un posicionador que permite compensar el movimiento del espejo, para mantener la focalización del spot del láser sobre la muestra.

Las mediciones de los espectros de dispersión Raman se realizaron en geometría BS utilizando un láser de titanio-zafiro. Dado que la microcavidad fue crecida con un gradiente de espesores, la energía del modo óptico varía con la posición del spot en la muestra. Cuando la energía del fotón dispersado coincide con el modo de la cavidad óptica, se observa la resonancia simple (saliente). En la Fig. 5.7 se presentan los espectros Raman medidos a temperatura ambiente para diferentes posiciones en la muestra, con un ángulo de

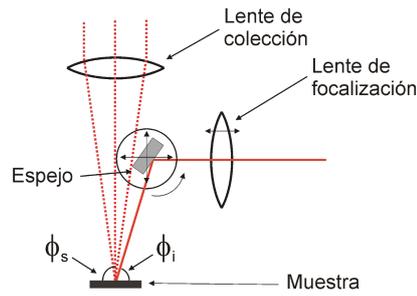


Figura 5.9: Esquema de la geometría utilizada en los experimentos de DRO. La lente de colección subtende un ángulo $\pi - 2\phi_s$. El ángulo de incidencia ϕ_i se varía para lograr la doble resonancia óptica. Tanto la posición como el ángulo del espejo pueden variarse, al igual que la posición de la lente de focalización para lograr la condición de DRO.

incidencia de aproximadamente 15° , y el láser fijado en una energía de 1.521 eV (815 nm). La energía de la transición electrónica del espaciador acústico se estima en 1.594 eV (778 nm) a temperatura ambiente, determinada por las mediciones de fotoluminiscencia a 80 K y extrapolando la diferencia conocida de los gaps con la temperatura. Los picos y oscilaciones en un espectro Raman entre 8 y 50 cm^{-1} son claramente observables en una única medición debido a la relativamente baja *finesse* de la cavidad óptica (aproximadamente 300). Las líneas continuas a 17.3, 34.5 y 53 cm^{-1} indican las posiciones de los fonones acústicos replegados en el centro de la zona de Brillouin (ZC[1], ZC[2] y ZC[3], respectivamente). La línea punteada es una guía para indicar la posición espectral del modo óptico, que a medida que se desplaza el spot sobre la muestra cambia entre 10 y 60 cm^{-1} . Notar que la amplificación selectiva de la emisión de fonones se logra cuando el modo óptico pasa por esas energías, en particular, los picos a 17.3 cm^{-1} (que corresponde a ZC[1]), y 34.5 cm^{-1} (correspondiente a ZC[2]) presentan un máximo. Notar también la presencia de oscilaciones entre las bandas prohibidas.

Es posible hacer uso de la dispersión angular de una microcavidad óptica para amplificar adicionalmente la sección eficaz Raman. Cambiando el ángulo de incidencia es posible sintonizar el modo de cavidad con la energía del fotón incidente, logrando una resonancia entrante. A esta condición en que tanto el fotón incidente como el dispersado se encuentran en resonancia con el modo de la microcavidad se la denomina doble resonancia óptica o simplemente DRO [3, 27, 110, 147]. De esta manera, debido a la amplificación resonante del campo eléctrico se produce una amplificación de las señales Raman que resulta aproximadamente proporcional a $|E|^4$ (véase ec. 5.7). Asimismo, dado el carácter estacionario del campo eléctrico dentro del espaciador de la microcavidad, se tiene acceso a las componentes BS y FS simultáneamente. La línea gruesa en la Fig. 5.7 corresponde a la condición de DRO que maximiza la intensidad del pico localizado a $\sim 17.3 \text{ cm}^{-1}$ asociado a los fonones acústicos confinados en el primer minigap del centro de la zona de Brillouin (CM). Para esto se elige un ángulo de incidencia de aproximadamente 15 grados, y una energía del láser de 1.521 eV ó 815 nm. Notar como el pico CM se amplifica cuando se logra la condición de DRO, alcanzando un máximo. Eligiendo adecuadamente una combinación de posición

y ángulo de incidencia se puede lograr la condición de DRO para maximizar diferentes bandas espectrales [110, 147].

En el panel a de la Fig. 5.10, se presentan los espectros experimentales (E) y simulados (S) tomados a temperatura ambiente y con un láser de 1.521 eV (815 nm). Las curvas experimentales corresponden a dos condiciones de DRO: maximizando la señal en ZC[1] y en ZC[3] respectivamente. Las simulaciones fueron realizadas utilizando el modelo fotoelástico, considerando una estructura nominal, y asumiendo que tanto el campo electromagnético incidente como el dispersado tienen la misma distribución espacial dada por la ec. 5.6. El espectro simulado fue convolucionado con una distribución gaussiana para tener en cuenta los efectos de resolución experimental limitada (0.4 cm^{-1}). Notar que los picos relacionados con ZE[1], ZC[1], ZE[2], ZC[2], y ZC[3] pueden observarse claramente. Los paneles b y c de la misma figura presentan los espectros tomados en alta resolución correspondientes a las bandas energéticas alrededor de ZC[1] y ZC[2] respectivamente. En el espectro mostrado en la Fig. 5.10b se puede identificar un pico intenso correspondiente al modo de cavidad CM, y oscilaciones laterales relacionadas con efectos de tamaño finito [148]. Los picos observa-

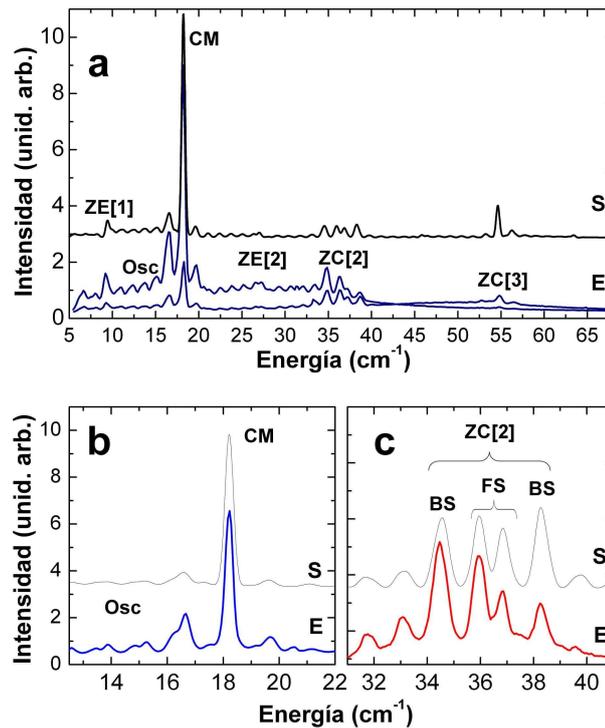


Figura 5.10: Panel a: Espectros Raman experimentales (E) y simulado (S). Las curvas experimentales corresponden a dos condiciones de doble resonancia óptica diferentes (ángulo de incidencia y posición sobre la muestra diferentes) tomados a temperatura ambiente y con un láser fijo a 815 nm. El espectro simulado fue convolucionado con una distribución gaussiana para tener en cuenta la resolución experimental con que fue tomado el espectro (0.4 cm^{-1}), y multiplicado convenientemente para aproximar la intensidad experimental. Los paneles b y c muestran un detalle de las regiones espectrales correspondientes al primer y segundo minigap en el centro de la zona Brillouin, medidos con una resolución de 0.15 cm^{-1} .

dos entre Osc y CM provienen de contribuciones de toda la estructura acústica, y son el producto de interferencias entre picos normalmente observables en geometrías BS y FS sin confinamiento óptico. Debe señalarse que estos modos no tienen una simetría definida. El espectro mostrado en la Fig. 5.10c presenta cuatro picos principales además de oscilaciones laterales. De estos cuatro picos principales, los dos picos exteriores son normalmente observables en BS, y los dos interiores corresponden al pico FS dividido como resultado de una interferencia entre los dos espejos acústicos [149]. Todas estas características son bien reproducidas por las simulaciones mostradas en la Fig. 5.10. Como se indicó previamente, en ZC[2] no hay un modo confinado. La tensión asociada a los modos acústicos en esta banda de energía es impar en el espaciador acústico, por lo que todas las contribuciones a la señal Raman provienen de las superredes. De esta manera, el CM es principalmente sensible a la interacción electrón-fonón en el espaciador acústico, mientras que los modos en ZC[2] son sensibles sólo a las interacciones en los espejos acústicos.

La observación de los picos relacionados con ZE y las oscilaciones en la Fig. 5.10a se atribuyen a una resonancia excitónica. En la siguiente sección se presentará un análisis de la amplificación del CM y otras características debidas a esta resonancia excitónica, siempre manteniendo la condición de doble resonancia óptica.

5.2.3. Raman resonante con un estado excitónico

Para estudiar los efectos de la resonancia excitónica, se realizaron experimentos de dispersión Raman cambiando la longitud de onda del láser entre 765 nm y 800 nm, siempre conservando la condición de doble resonancia óptica desplazando el spot sobre la muestra. En todos los casos, la energía del láser está por debajo de cualquier absorción en la nanocavidad acústica. El límite de 765 nm en el modo óptico de cavidad corresponde al borde de la muestra (extremo en donde la estructura es más angosta). Con el fin de reducir el fondo de fotoluminiscencia proveniente del espaciador acústico, todos los experimentos en esta sección fueron realizados a una temperatura de 80 K. En una primera serie de experimentos, la condición de DRO se sintonizó para maximizar CM (como en la Fig. 5.10b). El panel b de la Fig. 5.11 muestra los espectros Raman experimentales (picos finos sobre un fondo de luminiscencia proveniente del sustrato de GaAs, filtrado por la microcavidad óptica) en función de la longitud de onda del láser incidente. Este fondo de luminiscencia se encuentra indicado para uno de los espectros en gris. Notar que a medida que el láser se aproxima a la transición electrónica del espaciador acústico (~ 735 nm), los espectros Raman aumentan su intensidad. Una segunda serie de experimentos se realizó ubicando la condición de DRO en ZC[2] (panel c de la Fig. 5.11). A diferencia de lo que sucede con CM, los picos asociados a ZC[2] presentan una intensidad prácticamente constante. Esto está en acuerdo con el hecho de que estos modos son independientes de la condición resonante en el espaciador. Los cuadros interiores en la Fig. 5.11c muestran un espectro Raman como fue medido (izquierda), con el fondo de luminiscencia indicado en gris, y el espectro Raman luego de sustraer este fondo (derecha). En el panel a de la Fig. 5.11 se grafican las intensidades del CM (cuadrados) y de los picos de ZC[2] a 35 cm^{-1} (círculos) en función de la longitud de onda del láser incidente. Claramente el CM se amplifica selectivamente

respecto de los modos ZC[2]. Se observa una variación suave de la intensidad de los picos de ZC[2], que puede atribuirse a un comportamiento resonante con la transición electrónica más lejana de las capas que forman los espejos acústicos (a ~ 650 nm).

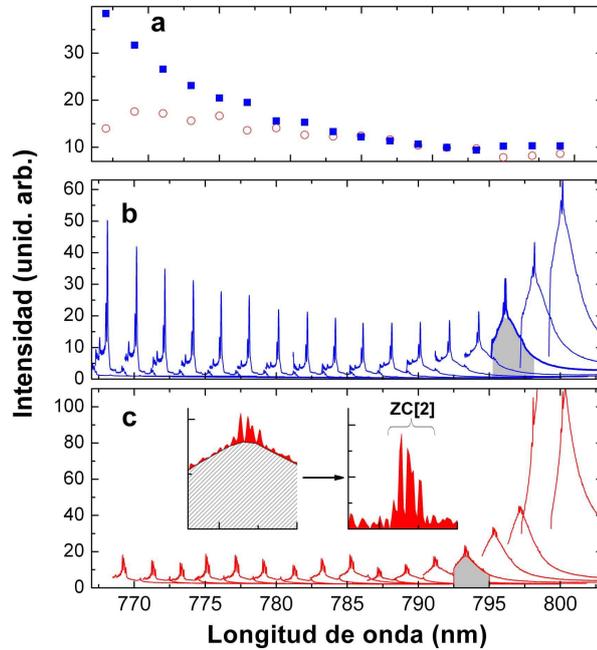


Figura 5.11: Panel a: intensidad en función de la longitud de onda del láser obtenida de los espectros en los paneles b y c del modo de cavidad (cuadrados negros) y de los picos de la región del segundo minigap en el centro de zona (círculos). Paneles b y c: espectros Raman en función de la longitud de onda del láser en condición de doble resonancia óptica para el CM y ZC[2], respectivamente (medidos a temperatura ambiente). Las zonas grises indican el fondo de fotoluminiscencia. El cuadro interior muestra un detalle de un espectro con y sin este fondo.

La Fig. 5.12 muestra el detalle de los espectros Raman medidos con diferentes longitudes de onda (indicadas a la izquierda), para una condición de DRO centrada en CM (panel superior) y en ZC[2] (panel inferior). En el panel superior puede observarse como el pico de cavidad es amplificado cuando el láser se aproxima a la resonancia excitónica en la cavidad acústica. Asimismo, pueden señalarse dos características adicionales de la resonancia excitónica. En primer lugar, del lado izquierdo del CM (energías más bajas), oscilaciones similares a las observadas por efecto de tamaño finito se amplifican resonantemente (indicadas como Osc. en la Fig. 5.10); en segundo lugar, picos localizados en el borde la zona de Brillouin a 9.3 y 26.8 cm^{-1} (ZE[1] y ZE[2], respectivamente) aparecen cuando el láser se aproxima a la energía del nivel electrónico del espaciador de la cavidad acústica. Como se mostrará a continuación, la amplificación del modo de cavidad CM con respecto a las señales ZC[2], junto con la observación del resto de las estructuras son una clara manifestación de la modulación de las propiedades elásticas en la muestra, combinada con una excitación resonante selectivamente localizada en el espaciador de la nanocavidad. El espectro en la región de ZC[2] mostrado en el panel inferior de la Fig. 5.12 se caracteriza

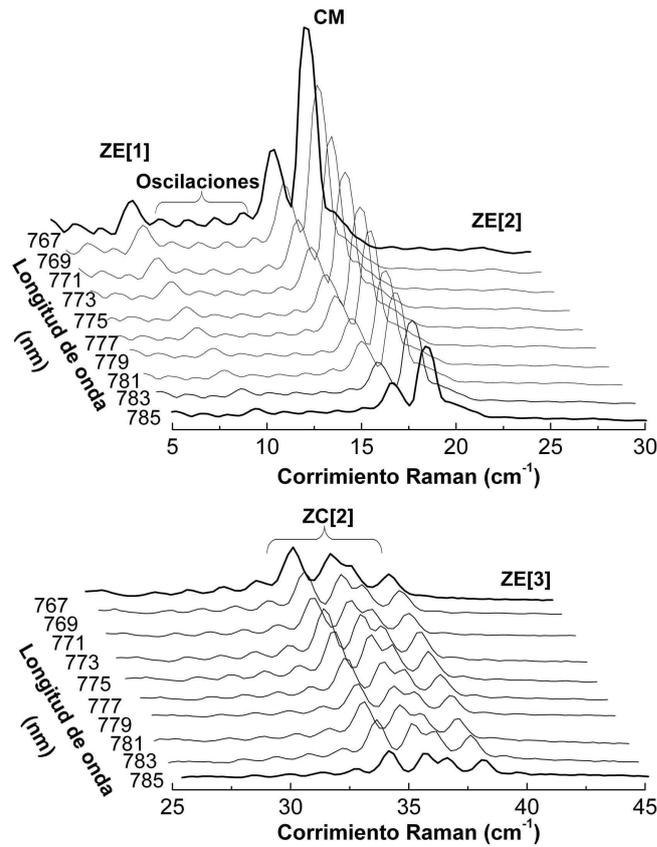


Figura 5.12: Espectros Raman medidos en función de la longitud de onda del láser para el CM (panel superior) y los modos ZC[2] (panel inferior) a 80 K. ZE, CM y ZC denominan los modos de borde de zona, de cavidad y de centro de zona de Brillouin respectivamente.

por la presencia de cuatro picos con una intensidad que es prácticamente independiente de la longitud de onda del láser. A diferencia del espectro mostrado en la Fig. 5.10, estos espectros fueron tomados con menor resolución y el pico FS no se observa totalmente desdoblado. Asimismo, pueden notarse oscilaciones laterales en el lado de bajas energías del espectro.

Para describir el comportamiento de los espectros a medida que se sintoniza la energía del láser con la transición electrónica del espaciador acústico, se realizaron simulaciones utilizando un modelo fotoelástico (ecs. 2.36 y 5.7). Los experimentos resonantes se simulan cambiando el valor de la constante fotoelástica en la capa correspondiente al espaciador de la cavidad acústica que está siendo resonantemente excitada. En este caso, se utilizó un mismo valor para todas las capas de GaAs, excepto para el espaciador acústico en el que este valor se multiplica por un factor n .

La Fig. 5.13 presenta los espectros Raman simulados en función de la constante fotoelástica del espaciador acústico. A la izquierda se indica el valor del factor n utilizado para calcular cada espectro. En el panel superior (inferior) se muestra el comportamiento de CM (ZC[2]), siempre en la condición de DRO. De las simulaciones deben destacarse los

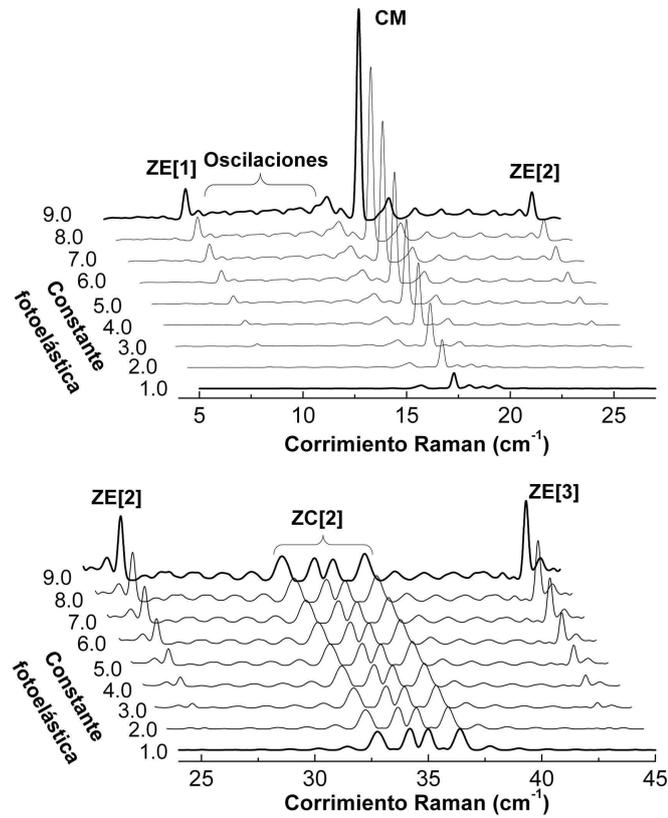


Figura 5.13: Espectros Raman calculados en función de la constante fotoelástica del espaciador acústico. A la izquierda, los números indican el factor por el cual la constante fotoelástica nominal fue multiplicada. ZE, CM y ZC denominan los modos de borde de zona, de cavidad y de centro de zona de Brillouin respectivamente.

siguientes resultados: 1) la intensidad del pico correspondiente al modo confinado acústico aumenta cuando el factor n se incrementa; su intensidad relativa respecto a otros picos y oscilaciones cercanas también aumenta. 2) La forma general del espectro cambia: por un lado los picos ubicados a 7.0 y 26.0 cm^{-1} (ZE[1] y ZE[2]) se vuelven observables; por otro lado, aparecen fuertes oscilaciones entre los minigaps. Y 3) la intensidad de los picos en la región de ZC[2] es prácticamente independiente del factor n . Esto es claro cuando se compara el comportamiento de ZE[2] y ZE[3] con ZC[2] en el panel inferior de la Fig. 5.13. Esto puede explicarse a partir de las simulaciones, considerando que $\partial u/\partial z$ es impar para ZC[2] en la capa central de la cavidad acústica. Por el contrario, para el modo de cavidad CM, $\partial u/\partial z$ es par en la estructura, y además se encuentra concentrado en la capa resonantemente excitada (véase Fig. 5.8).

La excitación resonante, o de manera equivalente, el aumento del valor de la contribución fotoelástica del espaciador acústico produce una excitación selectiva del modo CM. Esta excitación espacialmente localizada permite, además, la observación de los picos relacionados con ZE, que no son observables bajo una excitación no-resonante debido a la regla de selección de q discutida en la sec. 2.39. Al hacer la excitación resonante, esta regla no se cumple ya que se rompe la cuasi-periodicidad de la muestra. Asimismo, las oscilaciones

relacionadas con efectos de tamaño finito [148] también son resonantemente amplificadas; su número e intensidad relativa están determinados por el número de períodos y materiales que conforman los espejos acústicos. En la simulación mostrada en la Fig. 5.10 se utilizó un factor $n = 4.0$ para el espaciador de la nanocavidad acústica. El acuerdo entre experimentos y simulaciones es notable, y las principales características espectrales son reproducidas: oscilaciones laterales, picos en borde de zona, modos de cavidad, modos laterales, y picos asociados a ZC[2]. Sin embargo, cabe mencionar que las oscilaciones en el lado de altas energías del CM presentes en las simulaciones no fueron observadas en los espectros experimentales tomados a bajas temperaturas (Fig. 5.12); a temperatura ambiente, por el contrario, se pueden observar oscilaciones a ambos costados del CM, en acuerdo con las simulaciones usando el modelo fotoelástico.

5.3. Generación coherente de fonones acústicos en microcavidades ópticas

En la sección anterior se mostró cómo las cavidades ópticas pueden utilizarse para amplificar la generación *incoherente*, espontánea, de fonones acústicos en procesos Raman. Esta sección se centra en una aplicación no investigada aún, la utilización de microcavidades ópticas para la amplificación de la generación *coherente* de fonones acústicos. Su potencial para la realización de una fuente monocromática de fonones acústicos de ultra alta frecuencia (rango GHz-THz), no ha sido aún reportado en la literatura. En la sección anterior se analizaron los cambios en las reglas de selección Raman debidos al carácter estacionario del campo eléctrico dentro de la cavidad, y se estudiaron los efectos de la amplificación de las señales debidos a la amplificación del campo eléctrico dentro del espaciador óptico y a la resonancia electrónica con un pozo cuántico. Asimismo, el acuerdo obtenido entre experimentos y la simulaciones permitió validar los métodos de cálculo para las condiciones antes mencionadas usando un modelo fotoelástico. Esta sección tiene como objetivo introducir las ideas de confinamiento óptico en experimentos de generación de fonones acústicos coherentes mediante láseres ultrarrápidos, y explicar las implicancias en los mecanismos de generación y detección de estas vibraciones, extendiendo las ideas previamente expuestas en el contexto de la dispersión Raman.

En esta sección se presentarán los conceptos fundamentales sobre la generación y detección de fonones acústicos coherentes en resonadores para luz e hipersonido. Se analizarán tanto los cambios en las reglas de selección de ambos mecanismos, como así también las condiciones óptimas de amplificación que se pueden lograr en estos sistemas.

5.3.1. Modelo de generación y detección en microcavidades ópticas

En este apartado se desarrollarán los modelos que tienen en cuenta el confinamiento óptico en los procesos de generación y detección de fonones acústicos coherentes. La muestra modelo sobre la que se analizarán los resultados teóricos consiste en una microcavidad óptica formada por dos espejos encerrando un espaciador (ver el esquema mostrado en la Fig. 5.14). El espejo óptico superior (inferior) está formado por 10 (14) períodos de

$\text{Al}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{As}/\text{AlAs}$ de 61.95/71.79 nm. El espaciador λ de la cavidad óptica está constituido por una superred de 24.5 períodos de GaAs/AlAs de 7.25/2.86 nm. La cavidad óptica presenta un modo confinado a 850 nm.

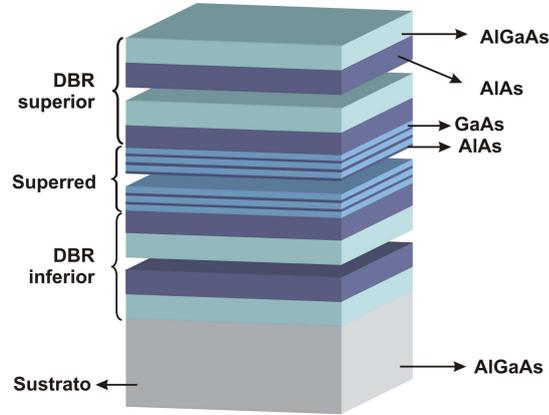


Figura 5.14: Esquema de la estructura de la microcavidad óptica. Una superred actúa como espaciador del resonador óptico.

La simulación de los mecanismos de generación y detección puede realizarse tanto en el dominio temporal, como en el dominio espectral. En el dominio temporal, la reflectividad óptica se puede calcular aplicando los siguientes pasos:

1. Se define la muestra sobre la que se realizan las simulaciones.
2. Se calcula la reflectividad óptica no perturbada $|r_0|$.
3. Se calcula $u(t)$, la evolución temporal de una determinada distribución de fonones.
4. Se determina el cambio en el índice de refracción en cada punto $\Delta n(z, t) \approx \frac{\partial u(z, t)}{\partial z} \frac{p(z)}{2n_0}$ (ver ecs. 2.33 y 2.78)
5. Teniendo en cuenta el nuevo índice de refracción $n_u(z, t) = n_0(z) + \Delta n(z, t)$, se calcula la reflectividad $|r(t)|^2$.
6. Se evalúa $\Delta R(t) = |r_0|^2 - |r(t)|^2$.
7. Se calcula $\Delta R(\omega)$ como la transformada de Fourier de $R(t)$.

De manera equivalente, el cálculo puede realizarse directamente en el dominio espectral, con el consecuente ahorro en el tiempo de cálculo, según el siguiente algoritmo:

1. Se define la muestra sobre la que se realizan las simulaciones.
2. Se calcula $|r_0|$.
3. Se considera la deformación $\frac{\partial u(z, \omega)}{\partial z}$ correspondiente a un dado fonón de frecuencia ω .

4. Se determina el cambio en el índice de refracción en cada punto $\Delta n(z, \omega) \approx \frac{\partial u(z, \omega)}{\partial z} \frac{p(z)}{2n_0}$ (ver ecs. 2.33 y 2.78).
5. Teniendo en cuenta el nuevo índice de refracción $n_u(z, \omega) = n_0(z) + \Delta n(z, \omega)$, se calcula la reflectividad $|r(\omega)|^2$.
6. Se evalúa $\Delta R(\omega) = ||r_0|^2 - |r(\omega)|^2|$.

En ambos procedimientos es posible considerar una distribución inicial de fonones arbitraria (blanca, un pulso gaussiano, etc...), o considerar directamente la distribución de fonones generados según un mecanismo dado (e.g. fotoelástico, Sec. 2.4.1). En todas las simulaciones presentadas en este apartado se considera que las constantes fotoelásticas en los espejos ópticos son despreciables, es decir, que las únicas contribuciones tanto para el proceso de generación como para el de detección provienen de la superred GaAs/AlAs. Esto es porque la constante fotoelástica resulta fuertemente dependiente de la energía del láser, y lejos de las transiciones electrónicas resulta despreciable. La condición se cumple para los materiales que forman los espejos ópticos, cuyos gaps electrónicos se encuentran en la región visible del espectro electromagnético. Por otro lado, se supone que tanto el pump como el probe son monocromáticos.

En primer lugar se analizará la generación de fonones acústicos en un sistema con confinamiento óptico. Para ello se calcula el espectro de generación según la ec. 2.67. En la Fig. 5.15 se muestra la amplitud del espectro generado en función de la longitud de onda del láser pump, y de la frecuencia de los fonones acústicos fotogenerados. Regiones más oscuras implican mayores amplitudes. En el panel superior se muestra la reflectividad óptica de la estructura en donde se puede distinguir claramente el modo confinado a 850 nm, y una banda de alta reflectividad entre 860 y 920 nm. En el panel de la izquierda se muestra la reflectividad acústica calculada considerando la superred inmersa en un medio GaAs. Como

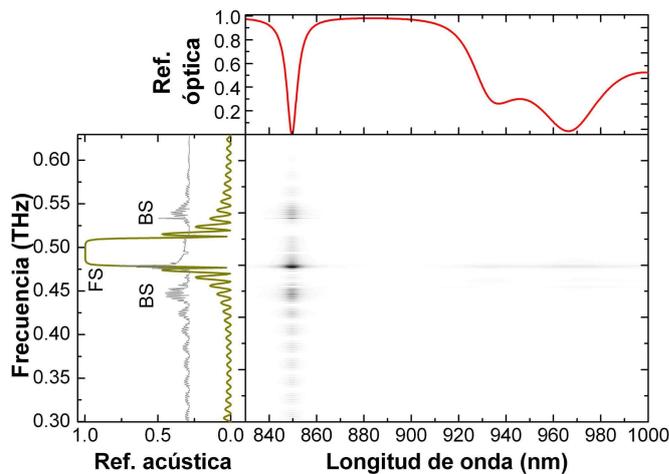


Figura 5.15: Amplitud del espectro generado en función de la longitud de onda del láser y de la energía de los fonones acústicos. Panel superior: reflectividad óptica de la muestra. Panel izquierdo: reflectividad acústica (línea gruesa) y espectro de generación calculado para una longitud de onda del láser $\lambda=850$ nm.

referencia se incluye en gris el espectro de generación calculado sobre la misma estructura para la condición de resonancia óptica ($\lambda=850$ nm). De esta figura deben remarcarse tres puntos importantes: i) El máximo de la señal generada se obtiene cuando el láser se acopla con el modo de cavidad; ii) El espectro generado, no sólo consiste en excitaciones de centro de zona (con $q = 0$ a ~ 0.48 THz, indicado con FS en la figura), sino que por el contrario se observan picos relacionados con $q \sim 2k$ a ~ 0.45 y 0.53 THz (indicados con BS); y iii) Entre 920 y 1000 nm, donde la reflectividad varía fuertemente con la longitud de onda, se pueden distinguir varias señales tenues con intensidades relativas que varían con la longitud de onda. En una superred sin confinamiento óptico el espectro de generación sólo está formado por excitaciones con $q = 0$ y su intensidad resulta independiente de la longitud de onda del láser (despreciando los efectos de las resonancias electrónicas).

De esta manera, es posible afirmar que la amplitud de generación presentará un máximo cuando el láser se acopla con el modo óptico de la cavidad. Esto es claro observando la ec. 2.67, en donde aparece un término asociado a la intensidad del campo eléctrico ($|F_0|^2$).

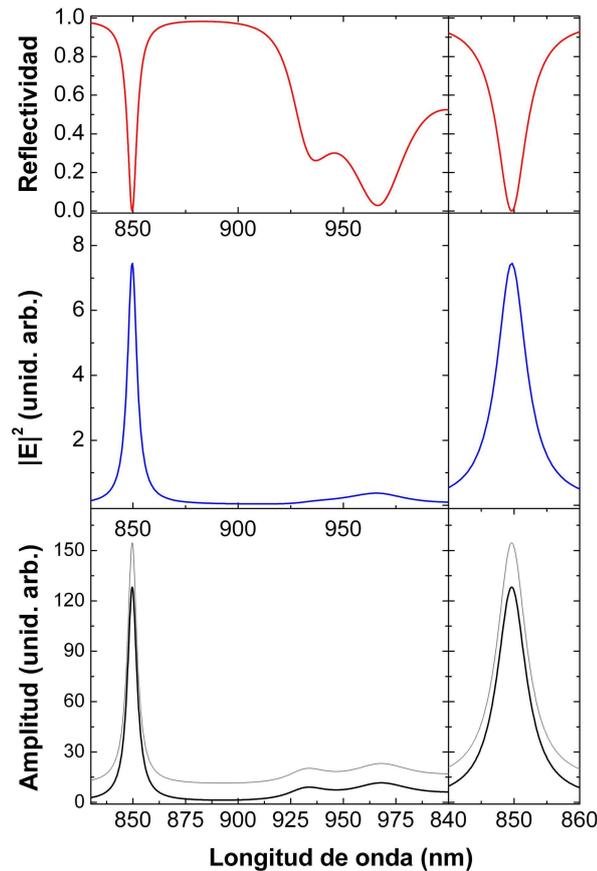


Figura 5.16: Generación de fonones acústicos coherentes en una microcavidad óptica. Paneles superiores: reflectividad óptica, paneles centrales: intensidad del campo eléctrico. Paneles inferiores: amplitud del espectro generado considerando fonones acústico con $q=0$ considerando una constante fotoelástica real (curva negra) y una imaginaria (curva gris). La curva gris fue desplazada verticalmente para mayor claridad. Derecha: detalle en la región del modo óptico de cavidad.

En una cavidad óptica, el campo eléctrico en el espaciador es máximo para la energía del modo confinado. En la Fig. 5.16 se comparan la reflectividad óptica (panel superior), la intensidad del campo eléctrico en el centro de la microcavidad (panel central) y la amplitud del espectro generado para fonones con $q = 0$ (panel inferior). En los paneles de la derecha se muestra un detalle de las mismas curvas en la región del modo óptico de cavidad. En el panel inferior se muestra en gris la amplitud de espectro generado si se considera en las capas de GaAs una constante fotoelástica imaginaria pura (desplazado verticalmente para mayor claridad). Al igual que en el caso de una constante fotoelástica real, la curva replica la intensidad del campo eléctrico en la cavidad, presentando un único máximo que coincide con el centro del modo óptico.

El proceso de generación de fonones coherentes en una microcavidad óptica es cualitativamente diferente al proceso de detección. A continuación se estudia en detalle el mecanismo de detección en una microcavidad óptica. Para ello se considera un espectro blanco de fonones acústicos, y se calcula la reflectividad en función de la longitud de onda del probe. En la Fig. 5.17 se muestra el mapa de amplitudes del espectro detectado. Regiones más oscuras representan mayores amplitudes. En el panel superior se muestra la reflectividad de la microcavidad, y en el panel de la izquierda la reflectividad acústica (línea gruesa) de la superred, y un espectro de detección calculado para una longitud de onda del probe $\lambda=851.6$ nm (línea gris), correspondiente a uno de los máximos de la señal. Observando el mapa de amplitudes, se puede notar que: i) existen dos bandas oscuras alrededor de 850 nm donde el espectro detectado presenta una amplitud máxima, y una banda con intensidad nula entre estas dos regiones; ii) se observa un pico intenso a 0.48 THz, correspondiente a una excitación con $q = 0$; y iii) entre 920 y 1000 nm se observan una serie de señales tenues asociadas a fonones con $q = 0$ y $q = 2k$ cuyas intensidades relativas varían fuertemente con la longitud de onda.

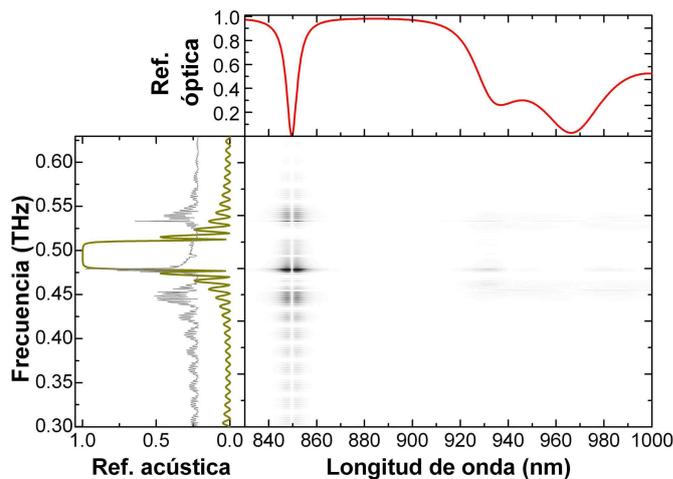


Figura 5.17: Amplitud del espectro detectado en función de la longitud de onda del láser y de la energía de los fonones acústicos. Panel superior: reflectividad óptica de la muestra. Panel izquierdo: reflectividad acústica (línea gruesa) y espectro de detección calculado para una longitud de onda del láser $\lambda=851.6$ nm.

La presencia de los dos máximos alrededor del modo óptico de cavidad puede explicarse considerando que, según el modelo fotoelástico implementado, los fonones acústicos de frecuencia ω modulan el índice de refracción del espaciador de la microcavidad óptica. Esta variación en el índice de refracción produce un cambio en la curva de reflectividad con la misma frecuencia, que a primer orden de aproximaciones se traduce en un desplazamiento del modo de cavidad alrededor de su posición nominal. En el modelo de detección estudiado se evalúa esta variación en función de la longitud de onda. Un cambio diferencial en el índice de refracción (o de manera equivalente en el espesor del espaciador óptico) induce un cambio diferencial en la posición del modo. Este movimiento producirá cambios más importantes en regiones espectrales donde la cavidad presente mayores variaciones de reflectividad. En otras palabras, el centro del modo óptico, es prácticamente insensible a cambios diferenciales en el índice de refracción, mientras que en los bordes del modo, donde la reflectividad varía fuertemente, el sistema presentará su sensibilidad máxima.

Una forma directa de analizar la sensibilidad del sistema es evaluando la derivada de la reflectividad. En la Fig. 5.18 se muestran la curva de reflectividad óptica (paneles

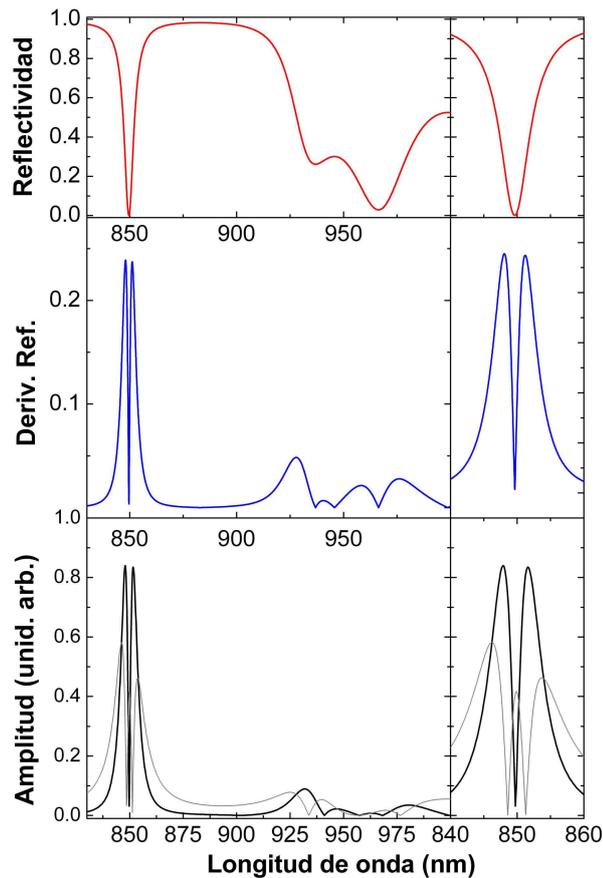


Figura 5.18: Detección de fonones acústicos coherentes en una microcavidad óptica. Paneles superiores: reflectividad óptica, paneles centrales: valor absoluto de la derivada de la reflectividad. Paneles inferiores: amplitud del espectro detectado considerando fonones acústico con $q=0$ y una constante fotoelástica real (curva negra) o una imaginaria (curva gris). Derecha: detalle en la región del modo óptico de cavidad.

superiores), el valor absoluto de la derivada de la reflectividad (paneles centrales) y la amplitud de los espectros detectados para un fonón acústico $q = 0$ (paneles inferiores). En negro (gris) se muestra el espectro de detección simulado considerando una constante fotoelástica en el GaAs real (imaginaria). En los paneles de la derecha se muestra un detalle alrededor del modo óptico de cavidad. Observando la curva negra, puede notarse que replica el comportamiento general del valor absoluto de la derivada de la reflectividad, presentando dos máximos alrededor del modo óptico, y un cero exactamente en el centro. Por el contrario, la curva gris, correspondiente a una constante fotoelástica del GaAs imaginaria, presenta tres máximos en lugar de dos. Además, en la región entre 900 y 1000 nm puede notarse que cada máximo de la curva negra se corresponde con un mínimo de la curva gris, y viceversa. En el panel de la derecha puede verse que uno de los máximos de la curva gris prácticamente coincide con el centro del modo de cavidad. Observando estos dos ejemplos (p real e imaginario) es claro que la respuesta de la microcavidad es fuertemente dependiente de la naturaleza de las constantes fotoelásticas de los materiales que forman el espaciador óptico.

En la Fig. 5.19 se muestra la amplitud de los espectros de detección en el entorno del modo óptico de cavidad considerando una constante fotoelástica del GaAs real pura (curva superior), compleja (curva central) e imaginaria pura (curva inferior). Las líneas verticales indican las posiciones del modo de cavidad, y de los máximos del valor absoluto de la derivada de la reflectividad. Observando la curva correspondiente al caso de la constante fotoelástica real pura, se pueden distinguir dos máximos que coinciden con los máximos del valor absoluto de la derivada de la reflectividad. Para la longitud de onda $\lambda=850$ nm aparece un cero absoluto, es decir que para el láser en resonancia con el modo óptico de cavidad no se detecta ninguna señal, a pesar de que la intensidad del campo eléctrico es

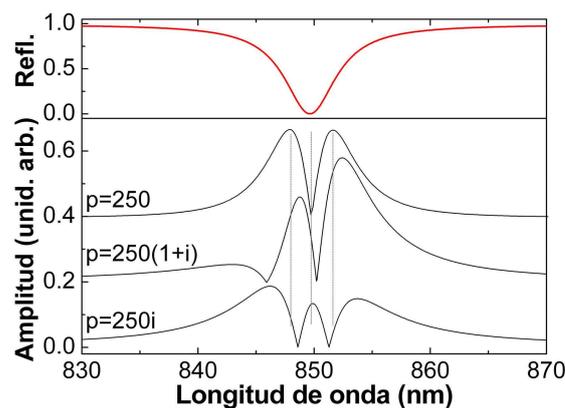


Figura 5.19: Detección de fonones acústicos coherentes en una microcavidad óptica. Panel superior: reflectividad óptica en el entorno del modo óptico de cavidad. Panel inferior: amplitud del espectro detectado considerando fonones acústico con $q=0$ y una constante fotoelástica real (curva superior), compleja (curva central) e imaginaria (curva inferior). Las curvas fueron desplazadas verticalmente para mayor claridad. Las líneas verticales indican las posiciones del modo de cavidad, y de los máximos del valor absoluto de la derivada de la reflectividad.

máxima en este punto. En el caso de la constante fotoelástica imaginaria pura se distinguen tres máximos. Uno de los máximos está prácticamente centrado en el modo de cavidad, mientras que los otros dos son más intensos y se encuentran más separados que en el caso de la constante real pura. Asimismo, pueden observarse dos ceros que delimitan el máximo central. Una constante fotoelástica con partes real e imaginaria se traduce en una respuesta espectral más complicada, e intermedia entre los casos anteriores. Cambiando la relación entre las partes real e imaginaria de las constantes fotoelásticas de los materiales que forman el espaciador de la microcavidad óptica, es posible, entonces, cambiar las posiciones de los máximos y los ceros en el espectro de detección.

Para realizar las simulaciones se consideró que el láser es monocromático. Si se tiene en cuenta el ancho espectral del pulso, en el caso de la constante fotoelástica real, también se obtiene un cero en el centro del modo óptico de cavidad. Esto se debe a que la función $|r_0(\lambda)|^2 - |r(\omega, \lambda)|^2$ es impar respecto al centro del modo óptico. Al realizar una convolución gaussiana con el ancho de los pulsos del láser, se conserva la paridad, obteniéndose nuevamente un cero en el centro del modo óptico. En los casos en que las constantes fotoelásticas no son reales puras, el análisis se vuelve más complejo, y la aparición de los ceros (y su eventual posición) depende del ancho de los pulsos del láser.

Al igual que en los procesos Raman, la presencia de la microcavidad óptica modifica las reglas de selección de los procesos de generación y detección de fonones acústicos coherentes. En el panel central (inferior) de la Fig. 5.20 se muestra la intensidad del espectro de generación (detección) considerando coeficientes fotoelásticos reales y fonones de 498.7 GHz en negro y 531.2 GHz en azul, con $q \approx 2k$ y $q \approx 0$, respectivamente. En el panel superior se presenta la reflectividad óptica calculada. Para facilitar la comparación entre los dos casos, las curvas fueron normalizadas por el máximo valor alcanzado en el entorno del modo óptico confinado. Entre 880 y 1000 nm, se muestra un detalle amplificado de las curvas.

En el caso de la generación (panel central), puede observarse que para ambas frecuencias se alcanza la máxima amplitud en el centro del modo óptico de cavidad. Entre 880 y 1000 nm, la curva azul presenta máximos en los mínimos de reflectividad; en esos mínimos hay mayor densidad de estados ópticos, y por lo tanto una amplificación parcial del campo electromagnético local. Los máximos en la curva negra ($q \approx 2k$) se ubican aproximadamente en las mismas posiciones. Cabe mencionar que en una superred sin cavidad óptica, la generación sólo es efectiva para $q \approx 0$ y resulta independiente de la longitud de onda. Para el proceso de detección (panel inferior), en la región del modo óptico de cavidad, las curvas presentan un comportamiento idéntico entre sí, y alcanzan dos máximos. Entre 880 y 1000 nm, para el fonón de $q \approx 0$ (curva azul) se distinguen cuatro ceros, mientras que para el caso $q \approx 2k$ (curva negra) sólo se observan dos. Para una superred sin confinamiento óptico, el proceso de detección es sensible a fonones con $q \approx 2k$, y resulta independiente de la longitud de onda. En resumen, el carácter estacionario del campo eléctrico dentro del espaciador de la microcavidad no sólo amplifica las señales en el entorno del modo óptico, sino que permite la generación (y detección) de fonones con $q = 0$ y $q = 2k$ simultáneamente. Esto resulta en una amplificación adicional respecto al caso en que el espectro de generación y el de detección no coinciden (por ejemplo en una superred).

Se ha visto como la cavidad óptica modifica intrínsecamente los espectros de generación

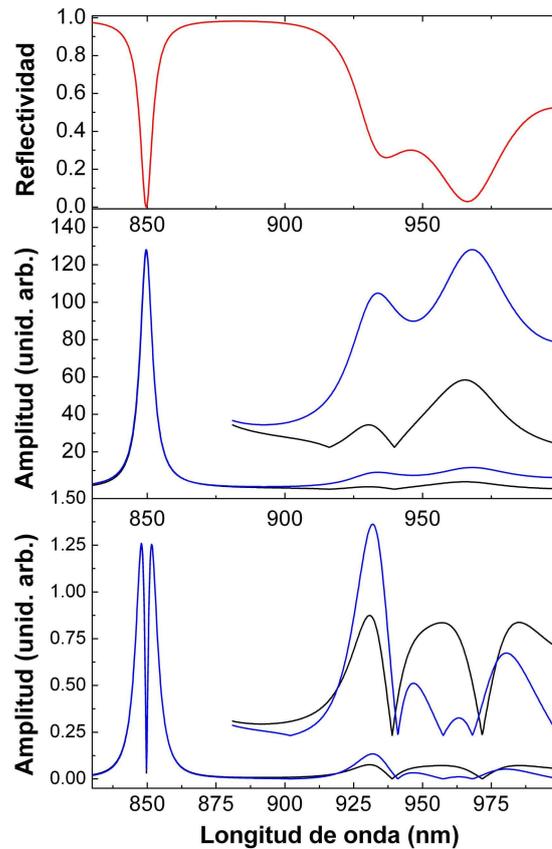


Figura 5.20: Reglas de selección para la generación y detección y detección de fonones acústicos coherentes. Panel superior: reflectividad óptica, panel central: amplitud de los espectros de generación. Panel inferior: amplitud de los espectros de detección. Las curvas negras (azules) corresponden a un fonón de frecuencia 498.7 GHz (531.2 GHz) con $q \approx 2k$ ($q \approx 0$).

y detección tanto cualitativamente como cuantitativamente. Cuando el láser se acopla con la microcavidad óptica se establece una onda estacionaria, que modifica los fonones que pueden ser creados. La amplificación en el proceso de generación es proporcional a la amplificación del campo eléctrico que puede lograrse en el centro de la cavidad óptica. Para la estructura considerada se obtuvo un factor de amplificación ~ 20 para el proceso de generación de un fonón $q \approx 0$, comparando la amplitud del espectro generado por una superred idéntica a la que forma el espaciador óptico de la microcavidad, pero sin DBRs. Por otra parte, la amplificación en el proceso de detección, considerando constantes fotoelásticas reales, está dada por la derivada de la curva de reflectividad respecto a la energía. El valor de esta derivada aumentará al aumentar la *finesse* de la cavidad. Nuevamente, comparando la señales de detección calculadas para la superred con y sin confinamiento óptico para un fonón con $q \approx 2k$, se obtuvo un factor de amplificación máximo de ~ 80 . En experimentos de generación y detección coherente de fonones acústicos de alta frecuencia, se requieren pulsos de femtosegundos [81]. Por lo tanto, la *finesse* de la cavidad óptica debe ser reducida respecto de los valores usuales utilizados para experimentos de dispersión Raman, para permitir que el pulso láser incidente se acople con la cavidad sin ser filtrado espectralmente.

De esta manera, la máxima amplificación posible en una cavidad óptica se verá limitada por el máximo ancho temporal del pulso de excitación.

En las siguientes secciones se presentarán los estudios experimentales de generación coherente de fonones acústicos en microcavidades ópticas que evidenciarán por un lado el rol del confinamiento fotónico en el cambio de las reglas de selección (Sec. 5.3.2) y por otro, la amplificación de las señales (Secs. 5.3.3 y 5.3.4).

5.3.2. Reglas de selección para la generación coherente de fonones acústicos en una cavidad óptica

En esta sección se estudiará experimentalmente una cavidad óptica asimétrica limitada por un DBR de 30 períodos de GaAlAs/AlAs de 53.3/62.3 nm de un lado, y por aire del otro (ver Fig. 5.21). El contraste en los índices de refracción entre el aire y el GaAs induce un coeficiente de reflexión de aproximadamente 0.3 en la superficie de la muestra. Un cálculo de la reflectividad óptica de la muestra sin considerar los efectos de absorción (utilizando índices de refracción reales para todos los materiales) se muestra en la Fig. 5.22 con línea gruesa. La reflectividad es esencialmente constante y aproximadamente 1 para energías mayores a 1.602 eV. Dada la asimetría de la microcavidad óptica, el modo en la energía de resonancia (1.680 eV) es ancho, y alcanza una reflectividad mínima de 0.998 (no se muestra en la figura). A pesar de que la reflectividad varía poco a lo largo de todo el stop-band óptico, el campo eléctrico tiene su máximo bien definido en la condición de resonancia. Con esta cavidad asimétrica con un factor de calidad $Q = 42$, se logra un factor de amplificación significativo, sin filtrar las componentes espectrales del pulso incidente. El espaciador de la cavidad (de espesor λ) está formado por la estructura en la que se generarán y detectarán los fonones acústicos. Esta estructura consiste en una nanocavidad acústica ($Q = 320$) que a su vez está formada por dos SRs de 12 períodos de GaAs/AlAs (6.1/2.4 nm) que actúan como espejos encerrando un espaciador de GaAs de 12.2 nm de espesor ($3\lambda/2$), con una frecuencia de resonancia de 0.59 THz [3].

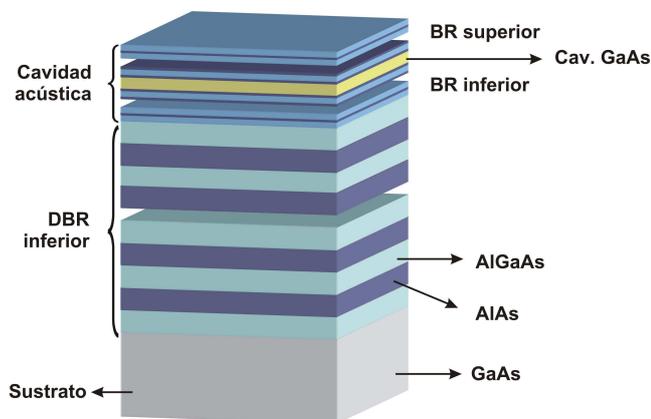


Figura 5.21: Esquema de la estructura de la microcavidad óptica. Una nanocavidad acústica actúa como espaciador de una microcavidad óptica limitada por un DBR de un lado y por aire del otro.

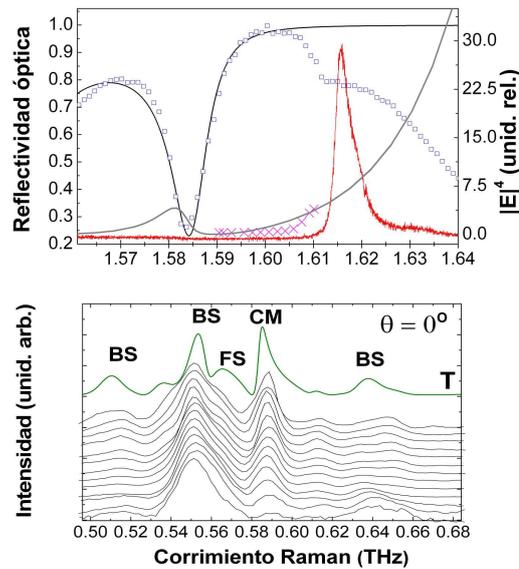


Figura 5.22: Panel superior: reflectividad de la microcavidad óptica calculada (línea negra) y medida (cuadrados). La curva roja es el espectro de fotoluminiscencia medido a 80 K. En gris se muestra $|E|^4$ calculado para el modo óptico de cavidad (relativo a $|E|^4$ transmitido en un medio semi-infinito de GaAs). Las cruces indican las intensidades de los espectros Raman, normalizados para ajustar el $|E|^4$ a 1.59 eV. Panel inferior: espectros de dispersión Raman medidos a 80 K para $\theta=0^\circ$, variando la energía del láser entre 1.59 (abajo) y 1.6 eV (arriba). CM, BS y FS indican el modo acústico de la nanocavidad, y picos asociados a $q = 2k$ y $q = 0$ respectivamente. T es el espectro Raman calculado en condición de DRO.

En el panel superior de la Fig. 5.22 también se presenta el espectro de fotoluminiscencia (curva roja) de la nanocavidad acústica medido a 80 K. El pico a 1.616 eV corresponde a la transición óptica fundamental de los espejos acústicos. Los cuadrados en la Fig. 5.22 corresponden a la reflectividad óptica medida con un láser de titanio-zafiro sintonizable, también a 80 K. Notar el acuerdo con la curva teórica hasta 1.610 eV, donde el borde de absorción de los espejos acústicos empieza a tomar importancia.

Para caracterizar vibracionalmente la muestra se realizaron experimentos de dispersión Raman. En el panel inferior de la Fig. 5.22 se muestran los espectros Raman medidos en una configuración de backscattering (BS) a 80 K, y con una incidencia normal ($\sim \theta = 0^\circ$), para un rango de energías del láser incidente entre 1.59 (abajo) y 1.61 eV (arriba). Estas energías cubren el rango espectral desde el borde del espejo óptico hasta la energía del excitón de los espejos acústicos. El espectro superior (en línea gruesa, e indicado con “T”) es el espectro Raman calculado para la nanocavidad acústica dentro de la cavidad óptica, utilizando un modelo fotoelástico para la eficiencia Raman, y suponiendo una condición de DRO. Este espectro calculado permite realizar una asignación de los picos presentes en los diferentes espectros. Los dos picos principales ubicados a 0.55 y 0.585 THz corresponden a un modo localizado en las SRs observable en geometría BS sin confinamiento óptico (BS), y al modo de la nanocavidad (CM), respectivamente. Con el fin de poner en evidencia los

efectos ópticos de la cavidad y eliminar la contribución resonante con el excitón de las SRs, los espectros experimentales fueron normalizados por la intensidad del pico de 0.55 THz. La observación del modo de la nanocavidad acústica requiere una condición de FS [3], que en este experimento está dado por el confinamiento del campo electromagnético en la microcavidad óptica, y que produce la amplificación del campo eléctrico. Notar además la aparición de una señal a 0.565 THz, que corresponde a una contribución FS de los espejos acústicos, también observable gracias a la presencia de la microcavidad óptica. La intensidad Raman del pico CM en función de la energía del láser incidente se muestra en la Fig. 5.22 con cruces. Puede observarse que sigue el comportamiento de $|E|^4$ (línea gris), como se estudió en las Secs. 5.1 y 5.2.

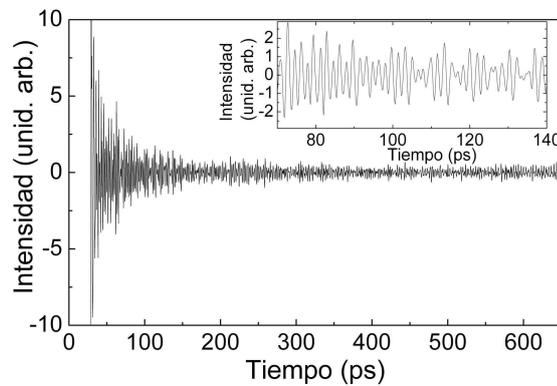


Figura 5.23: Reflectividad resuelta en tiempo medida en la microcavidad óptica con una energía de láser de 1.653 eV a 80 K. La señal fue filtrada para remover el fondo correspondiente a la respuesta electrónica del sistema. Cuadro interior: detalle de la misma señal entre 70 y 140 ps donde se puede observar el carácter coherente de las oscilaciones.

Habiendo establecido que la cavidad óptica está amplificando y confinando el campo eléctrico, y con los picos Raman bien identificados, se realizaron experimentos de generación coherente de fonones acústicos con pulsos de luz ultra-rápidos. Los experimentos se realizaron en configuración de reflectometría, a 80 K, para diferentes energías del láser entre 1.59 y 1.653 eV, cubriendo la región entre el borde del espejo y la energía del excitón de los espejos acústicos. En la Fig. 5.23 se muestra la reflectividad resuelta en tiempo medida con una energía de láser de 1.653 eV. A la señal se le aplicó un filtro pasabanda entre 300 y 900 GHz para remover el fondo correspondiente a la respuesta electrónica del sistema. En el cuadro interior se muestra un detalle de la señal entre 70 y 140 ps donde se puede observar claramente el carácter coherente de las oscilaciones. Debajo de la energía del excitón de los espejos fonónicos (~ 1.616 eV), los espectros corresponden principalmente a la excitación y detección del modo de cavidad. La amplitud de las transformadas de Fourier en la región espectral correspondiente al modo de cavidad se puede observar en el panel superior de la Fig. 5.24. Se fijaron los haces pump y probe para estar en incidencia prácticamente normal ($\theta = 0^\circ$). La amplitud del modo CM es amplificada por dos efectos simultáneos: la resonancia electrónica con los BRs, y por la amplificación del campo eléctrico debido a los efectos

de confinamiento. Para demostrar la influencia de estos últimos en las reglas de selección, y el efecto de la resonancia electrónica, se repitieron los experimentos pero con un ángulo de incidencia $\theta \sim 65^\circ$ (panel inferior). Para este ángulo, el borde del stop-band óptico se desplaza bien por arriba del excitón, a 1.638 eV, y por lo tanto, toda la fenomenología de la generación coherente de fonones acústicos en la región espectral estudiada queda principalmente determinada por la resonancia de las constantes fotoelásticas, sin ninguna contribución apreciable de los efectos de confinamiento óptico. En este caso, y en total contraste con lo observado en las mediciones realizadas en incidencia normal, las señales son más débiles (las curvas fueron multiplicadas por un factor 6 para mostrar amplitudes similares a las del panel superior). Los espectros se encuentran dominados por el pico BS a 0.545 THz. Este modo, de acuerdo a la teoría, es más eficientemente detectado en ausencia del confinamiento óptico (véase Sec. 3.2.2).

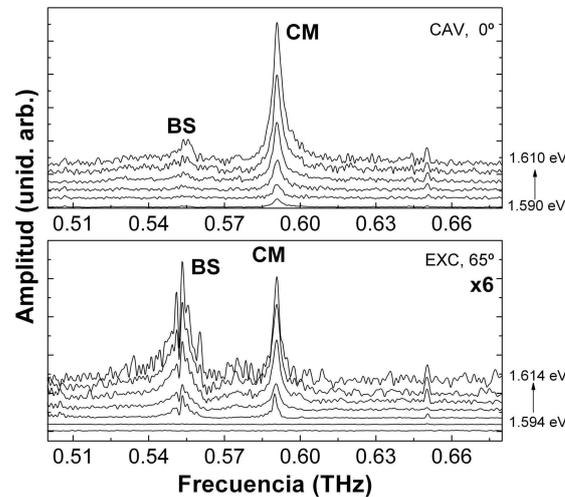


Figura 5.24: Transformadas de Fourier de la reflectividad resuelta en tiempo en la región espectral alrededor del modo acústico de cavidad. Panel superior: experimentos realizados en incidencia normal para diferentes longitudes de onda. Panel inferior: experimentos realizados con un ángulo de incidencia de aproximadamente 65° para diferentes longitudes de onda. Los espectros en el panel inferior han sido multiplicados por un factor 6 para mostrar amplitudes similares a las del panel superior.

En esta sección se observó la modificación de las reglas de selección en los espectros detectados, de manera similar a lo que ocurre en el caso de la dispersión Raman. Asimismo se observó el efecto de la resonancia con el nivel electrónico confinado en los pozos cuánticos que forman los espejos acústicos. La existencia de este excitón no permite, sin embargo, separar fuera de toda duda, la contribución electromagnética en esta muestra.

5.3.3. Generación coherente de fonones en condición de resonancia óptica

En el apartado anterior se estudió cómo cambian las características espectrales de la señal detectada variando la longitud de onda del láser a lo largo del borde del stop-band óptico. Se observó una amplificación de las señales, pero debido a la presencia del excitón

de los espejos acústicos, no fue posible separar las contribuciones de la resonancia electrónica y de la amplificación del campo eléctrico. A continuación se presentan los resultados experimentales de generación coherente de fonones acústicos en condición de resonancia óptica, es decir, sintonizando la longitud de onda del láser con el modo de cavidad, y fuera de la condición de resonancia excitónica.

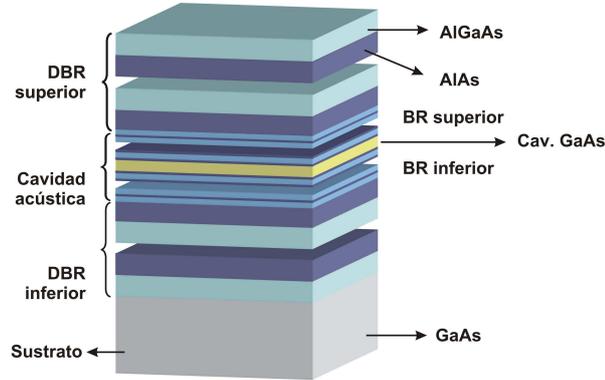


Figura 5.25: Esquema de la estructura de la microcavidad óptica. Una nanocavidad acústica actúa como espaciador del resonador óptico.

Para estudiar la amplificación de señales debida al confinamiento óptico se diseñó y creció una muestra por MBE sobre un sustrato GaAs orientado en la dirección (001), doblemente pulido. La estructura consiste en una microcavidad óptica cuyo espejo superior (inferior) está formado por 3 (10) períodos de $\text{Al}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{As}/\text{AlAs}$ de 58.20/67.44 nm como espesores nominales. Los espejos ópticos están separados por un espaciador de espesor óptico nominal λ_L , con $\lambda_L=800$ nm. Esta cavidad presenta un modo óptico de aproximadamente 13 nm de ancho, que es del orden del ancho de un pulso del láser utilizado. El espaciador de la microcavidad óptica esta formado por una nanocavidad acústica constituida por dos BR de 13 períodos de 6.15/2.43 nm de GaAs/AlAs ($3\lambda_s/4, \lambda_s/4$) cada uno. Los espejos acústicos están separados por un espaciador de 12.29 nm de GaAs ($3\lambda_s/2$). Debido a efectos de confinamiento electrónico, la energía nominal del excitón en los espejos acústicos se encuentra en ~ 765 nm, mientras que en el espaciador de la cavidad se encuentra en ~ 799 nm. La muestra fue crecida con un gradiente lineal en los espesores de manera que es posible cambiar la energía del modo óptico de cavidad, variando la posición del spot del láser. Esta característica permite desplazar el modo de la microcavidad óptica entre las transiciones de los espejos fonónicos y del espaciador acústico de la nanocavidad.

Se realizaron experimentos de dispersión Raman en condición de doble resonancia óptica, a 80 K usando un láser continuo de titanio-zafiro con el fin de caracterizar los estados vibracionales de la nanocavidad inmersa en la cavidad óptica, y de verificar los efectos de confinamiento óptico. En la Fig. 5.26 se muestran en el panel superior la reflectividad acústica calculada, y en el panel inferior, los espectros Raman medido (línea continua) y calculado (línea de puntos) en condición de doble resonancia óptica, con una longitud de onda del láser $\lambda_L=772$ nm. Como se verá más adelante, la longitud de onda del láser corresponde a una energía que se localiza entre las transiciones electrónicas del espaciador,

y de los pozos cuánticos que forman los espejos acústicos. En el espectro se pueden observar claramente varios picos entre los que se destaca el modo acústico confinado (indicado con un asterisco). Los picos laterales corresponden a modos normalmente observables en geometrías BS y FS. La presencia del modo de cavidad es un indicativo certero de que se cumple la condición de confinamiento de los fotones. El acuerdo general entre experimentos y cálculos es remarcable, poniendo en evidencia la alta calidad de la muestra estudiada y la validez del modelo fotoelástico para la dispersión Raman.

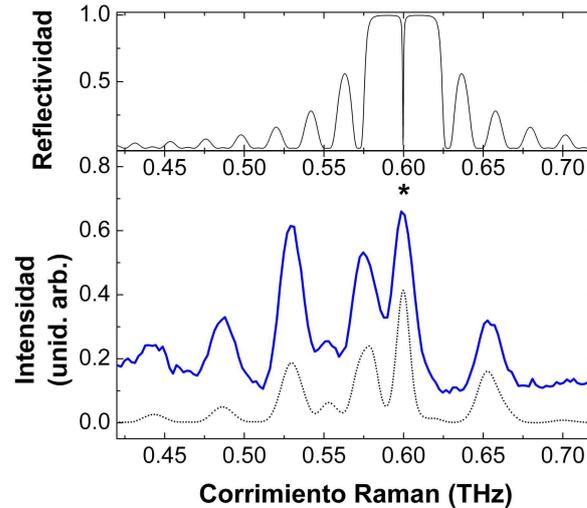


Figura 5.26: Panel superior: Reflectividad acústica calculada para la cavidad acústica simple. Panel inferior: espectros de dispersión Raman en condición de doble resonancia óptica medido a 80 K (línea continua) y calculado usando un modelo fotoelástico (línea punteada).

El resultado de un experimento de espectroscopía por excitación de fotoluminiscencia (PLE²) está asociado a las energías de absorción óptica de la muestra estudiada [1]. El experimento consiste en medir la intensidad de un dado pico de fotoluminiscencia (PL) al variar continuamente la energía del láser utilizado como fuente de excitación. La intensidad de emisión de PL presentará máximos cuando la energía del láser coincida con transiciones electrónicas de la muestra. Se realizaron experimentos de PLE sobre la microcavidad óptica a 14 K, utilizando como fuente de excitación un láser de titanio-zafiro. En la Fig. 5.27 se muestra el espectro de fotoluminiscencia (curva negra), en donde se pueden identificar las emisiones de los BR y del espaciador de la cavidad acústica a 765 y 804 nm, respectivamente. En rojo se muestra el espectro de PLE medido sobre el borde de la emisión correspondiente al espaciador de la cavidad. En el espectro de PLE se pueden distinguir: i) un pico asociado a la transición de los BR; ii) un modo ancho, correspondiente al modo óptico de cavidad, en este caso la emisión es amplificada debido a que el láser logra excitar más eficientemente la muestra cuando se acopla con el modo de la microcavidad; y iii) los picos correspondientes a las transiciones e1-lh1 y e1-hh1 (indicadas como LH y HH respectivamente). En la posición de la muestra en la que se realizó la medición de PLE se

²del inglés PhotoLuminescence Excitation

ve claramente que el modo óptico se ubica entre las transiciones electrónicas de los BR y del espaciador acústico.

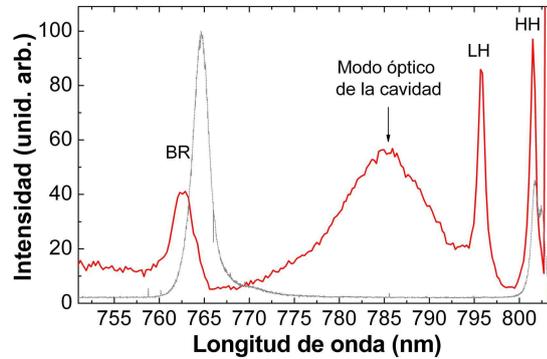


Figura 5.27: Espectro de PLE de la microcavidad óptica (curva roja) y espectro de fotoluminiscencia (curva negra) medidos a 14 K. BR, LH y HH indican las transiciones en los espejos fonónicos, y e1-lh1 y e1-hh1 en el espaciador de la nanocavidad acústica, respectivamente. El corrimiento en BR entre las dos curvas se debe a la diferencia entre las energías de absorción y emisión en las SRs que forman los espejos acústicos.

Los experimentos de fotoluminiscencia en función de la posición del modo óptico de la cavidad permiten determinar la dependencia de las energías de emisión con el gradiente de espesores. En la Fig. 5.28 se muestran los espectros de PL de la microcavidad óptica en función de la posición del spot en la muestra, medidos a 14 K, cada 0.5 mm en la dirección del gradiente. Cav y BR indican las emisiones del espaciador y de los espejos acústicos, respectivamente. En el cuadro interior se muestra un detalle de la emisión de la cavidad acústica para dos puntos donde la posición del modo óptico de la cavidad difiere en 24.5 mm. A la derecha se muestra un esquema de la parte de la muestra caracterizada por PL, y se indican las longitudes de onda correspondientes al modo de cavidad para las

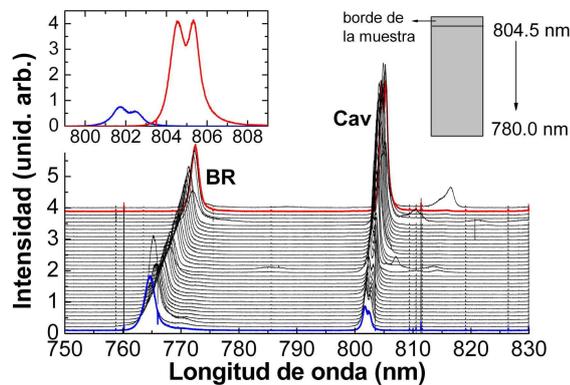


Figura 5.28: Espectros de fotoluminiscencia de la microcavidad óptica medidos a 14 K en función de la posición sobre la muestra. Los espectros fueron tomados cada 0.5 mm. Cuadro interior: detalle de la emisión de la cavidad acústica para dos puntos donde la posición del modo óptico de la cavidad difiere en 24.5 mm. CAV y BR indican las emisiones del espaciador y de los espejos acústicos, respectivamente.

dos posiciones extremas. Como puede observarse, la emisión del espaciador de la cavidad varía sólo 3 nm con la posición en la muestra, mientras que la emisión de los BR varía más de 8 nm en el rango de posiciones medidas. De esta manera, ubicando el modo óptico entre 770 y 790 nm siempre se está entre las transiciones de los BR y del espaciador acústico.

A 14 K, el modo óptico siempre se ubica en longitudes de onda menores que 805 nm, para cualquier posición en la muestra. Localizando el pump entre 770 y 790 nm, en experimentos de generación coherente de fonones acústicos siempre se estará en condición de excitación selectiva del pozo cuántico que forma el espaciador de la cavidad acústica [150]. La excitación selectiva de un pozo cuántico tendrá efectos en los espectros de generación y detección equivalentes a los observados en la dispersión Raman resonante estudiada en la Sec. 2.3.2. El carácter selectivo será más o menos fuerte dependiendo de la cercanía del láser a las transiciones electrónicas del espaciador o de los BR.

Se realizaron experimentos de generación coherente de fonones acústicos con pulsos ultra-rápidos de luz sobre la microcavidad óptica, en función de la posición del modo óptico confinado, y de la longitud de onda del láser. Los experimentos fueron realizados a 14 K a fin de repetir las condiciones experimentales que se utilizaron en la caracterización de los estados electrónicos. Para el pump (probe) se utilizó una potencia típica de 60.0 mW (20.0 mW). Ambos haces fueron focalizados sobre la muestra con una lente de 60 mm de distancia focal. En la Fig. 5.29 se muestra la reflectividad resuelta en tiempo medida en la microcavidad en configuración de reflectometría. El experimento fue realizando con el láser en condición de resonancia óptica con el modo óptico de cavidad, ubicado en 775 nm. La señal se encuentra caracterizada por una fuerte variación inicial de la reflectividad, originada por la rápida respuesta electrónica de la muestra, seguida de un decaimiento lento. Las oscilaciones de alta frecuencia características del sistema acústico estudiado se encuentran inmersas en esta señal. En el cuadro interior de la Fig. 5.29 se muestra un detalle de la derivada de la misma señal entre 100 y 200 ps, sin el fondo de variación

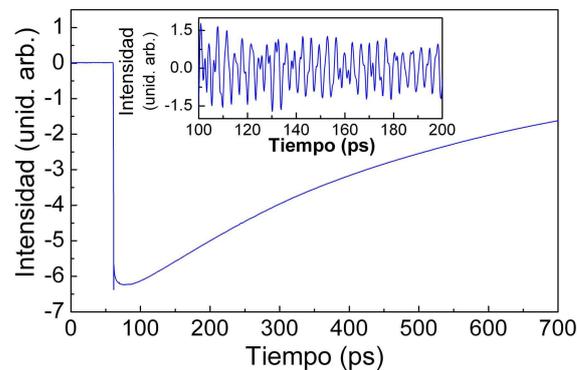


Figura 5.29: Reflectividad resuelta en tiempo medida en la microcavidad con el láser en resonancia con el modo óptico de la cavidad centrado en 775 nm. La medición fue realizada a 14 K, quedando el modo óptico de la cavidad entre las transiciones electrónicas de los espejos fonónicos y del pozo cuántico formado por el espaciador acústico. Cuadro interior: detalle de la derivada de la misma señal entre 100 y 200 ps sin el fondo de variación lenta, y filtrada entre 200 y 900 GHz.

lenta, y tratada con un filtro pasabanda entre 200 y 900 GHz. Puede observarse que las oscilaciones de alta frecuencia están muy bien definidas.

En la Fig. 5.30 se muestra la transformada de Fourier de la medición de reflectividad resuelta en tiempo en la microcavidad óptica, mostrada en la Fig. 5.29. En el espectro se pueden distinguir dos picos principales a ~ 0.3 y 0.6 THz correspondientes a los modos acústicos confinados en ZE[1] y ZC[1]. Estos se indican con un círculo azul y uno rojo, respectivamente. La señal se encuentra dominada por estos dos picos debido a la superposición existente entre los espectros de generación y detección, como se vio en la sección anterior. Además, se pueden ver picos secundarios de menor intensidad que pueden estar asociados a modos en los espejos acústicos y ópticos. La observación del modo de cavidad en el borde de la minizona de Brillouin, al igual que en el caso de la dispersión Raman resonante, es una evidencia del régimen de excitación selectiva [150] o resonante del pozo cuántico formado por el espaciador acústico.

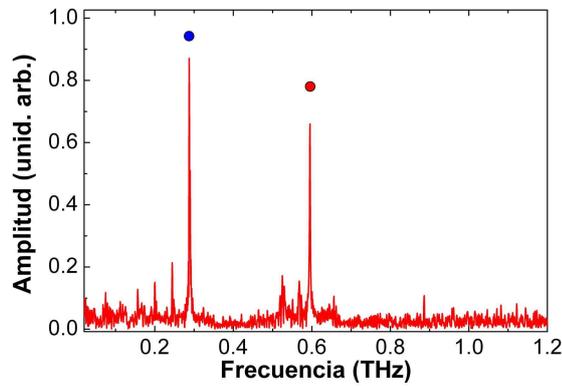


Figura 5.30: Transformada de Fourier de una medición de reflectividad resuelta en tiempo en la microcavidad óptica, medida con el láser cerca de la condición de resonancia óptica. Con círculos azul y rojo se indican los modos acústicos confinados en ZE[1] y ZC[1], respectivamente.

En los paneles a, b y c de la Fig. 5.31 se muestran los resultados experimentales de los experimentos de generación coherente de fonones acústicos en la microcavidad óptica realizados con el modo óptico de cavidad ubicado a ~ 775 , 785 y 795 nm, respectivamente. En los paneles superiores se muestra la señal continua medida por el diodo correspondiente al haz probe reflejado por la muestra. En los tres casos se puede observar un modo de la cavidad óptica muy bien definido. La curva continua verde es un ajuste con una distribución gaussiana de los puntos experimentales. En gris se muestra la derivada de este ajuste. El ancho del modo óptico de cavidad medido fue de 15.6 , 19.4 y 17.8 nm, para los tres experimentos, respectivamente. Estos valores se comparan bien con el valor nominal de 13.2 nm, teniendo en cuenta que el ancho del pulso del láser usualmente se encuentra entre 13.3 y 15.7 nm dependiendo de las condiciones de alineación para cada longitud de onda. En los paneles inferiores se pueden observar las amplitudes de los picos asociados a los modos confinados de cavidad (CM) en ZE[1] (azul) y en ZC[1] (rojo).

La Fig. 5.31a corresponde a la situación en que el modo óptico de cavidad (indicado

con una línea vertical) se encuentra más cerca de la transición electrónica de los BR. En la curva de puntos rojos (CM en ZC[1]) se pueden distinguir claramente dos máximos, y un mínimo que coincide con el modo óptico. La amplitud del modo confinado en ZE[1], por el contrario, presenta un único máximo que coincide con uno de los máximos de la curva roja. Al sintonizarse el láser con la transición electrónica de los BR se observa una fuerte amplificación de la señal del CM. En el cuadro interior de la Fig. 5.31a se muestra la amplitud del CM en ZC[1] en un rango extendido de longitudes de onda, donde puede apreciarse el efecto de la resonancia electrónica. El modo confinado en ZE[1], por el contrario no presenta este comportamiento resonante, sino que por el contrario, disminuye su intensidad de forma continua. Esto se debe a que al entrar en resonancia con los espejos acústicos, se pierde el carácter selectivo de la excitación del pozo cuántico formado por el espaciador acústico.

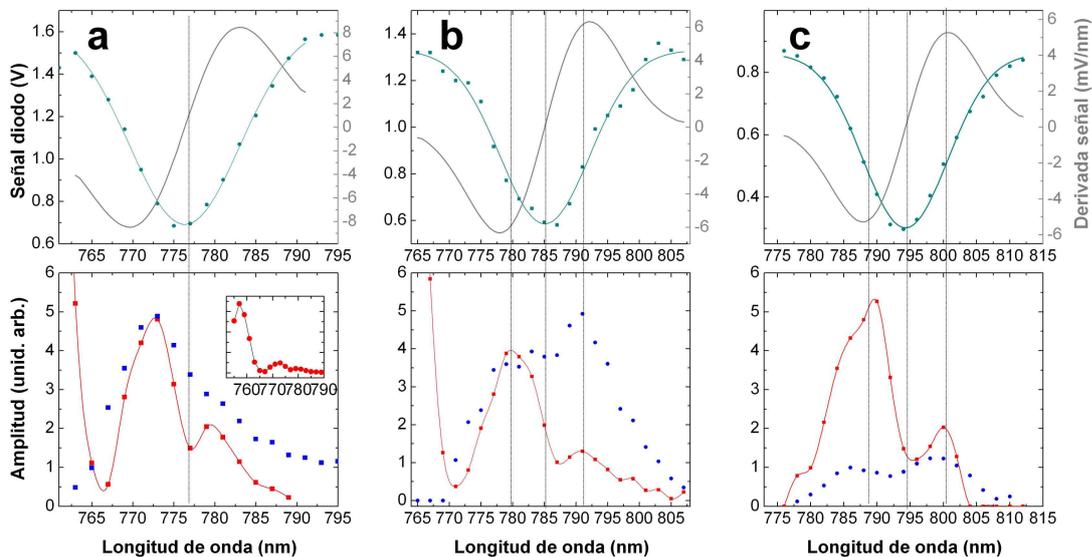


Figura 5.31: Generación coherente de fonones acústicos en la microcavidad óptica a 14 K, con el modo óptico ubicado en ~ 775 nm (a), ~ 785 nm (b) y ~ 795 nm (c). Paneles superiores: señal continua medida por el diodo correspondiente al probe reflejado por la muestra. En gris se muestra la derivada de la señal. Paneles inferiores: amplitud de los modos confinados acústicos en ZE[1] (azul) y ZC[1] (rojo) en función de la longitud de onda del láser. Las líneas verticales indican las posiciones del modo óptico de cavidad (centro) y de los máximos en la señal detectada. Cuadro interior en (a): amplitud del modo confinado en ZC[1] en un rango extendido de longitudes de onda.

La situación en que el modo óptico de la microcavidad se ubica en 785 nm, entre las transiciones de los BR y del espaciador se presenta en la Fig. 5.31b. Las líneas verticales indican las posiciones del modo óptico de cavidad (línea central) y de los máximos en la señal detectada. Observando la intensidad del CM en ZC[1] (en rojo) se puede ver un comportamiento similar al caso mostrado en la Fig. 5.31a: i) se distinguen dos máximos que coinciden aproximadamente con el máximo y con el mínimo de la derivada de la reflectividad; ii) para longitudes de onda menores a 770 nm se evidencian los efectos de resonancia

electrónica con los espejos acústicos amplificándose la señal; y iii) se distingue un mínimo entre los dos máximos que se encuentra levemente desplazado respecto al modo óptico. La amplitud del modo acústico confinado en ZE[1] (azul) es cualitativamente diferente. Por un lado se observan dos máximos que coinciden con los máximos del CM en ZC[1] (en lugar de uno, como el mostrado en la Fig. 5.31a), y un mínimo prácticamente centrado con el modo óptico; y por otro lado la relación de intensidades entre los dos máximos se invierte respecto del CM en ZC[1]. Asimismo, cuando se entra en condición de resonancia electrónica con los espejos acústicos se pierde el carácter de excitación selectiva, y deja de observarse el modo del borde de la minizona de Brillouin. Debe notarse que la transición electrónica de los BR se localiza a una longitud de onda levemente mayor que en el caso mostrado en la Fig. 5.31a debido al gradiente en los espesores.

Finalmente, la Fig. 5.31c corresponde al caso en que el modo óptico se encuentra sobre la transición e1-lh1 del estado electrónico confinado en el espaciador acústico de la nanocavidad. Nuevamente se observa que el CM en ZC[1] presenta dos máximos que coinciden aproximadamente con el máximo y con el mínimo de la derivada de la reflectividad óptica. Como en los casos anteriores, el máximo a 790 nm es más intenso que el de 800 nm. Se puede notar que para longitudes de onda mayores que 803 nm la señal se anula (aproximadamente sobre la transición e1-hh1). El modo acústico confinado en ZE[1] presenta un comportamiento semejante a los dos casos anteriores, salvo por un cambio en las intensidades relativas entre los modos en ZE[1] y ZC[1].

El análisis de los resultados experimentales en esta muestra es más complejo que en el caso teórico analizado en la Sec. 5.3.1. En la cavidad para luz e hipersonido se pueden diferenciar dos coeficientes fotoelásticos distintos como consecuencia de los efectos de confinamiento electrónico. Es otras palabras, el coeficiente fotoelástico en el espaciador acústico de la nanocavidad por un lado es mayor en magnitud que el correspondiente a las capas de GaAs en los espejos acústicos (carácter resonante), y por otro lado se puede asumir que tiene una componente imaginaria. El coeficiente fotoelástico en los BR se puede considerar real puro en la región de transparencia. A su vez, en la región espectral estudiada, todos los coeficientes fotoelásticos son fuertemente dependientes de la longitud de onda del láser.

En los tres casos estudiados se observó la presencia del modo acústico confinado en ZE[1], evidenciando el carácter selectivo de los procesos de excitación y detección de fonones acústicos. Por otro lado, es notable la observación de dos máximos en todas las señales que pueden asociarse por un lado a la amplificación del campo eléctrico en el espaciador de la cavidad, y por el otro, al aumento de la sensibilidad de detección del sistema, dado por las fuertes variaciones de reflectividad en el entorno del modo óptico confinado.

5.3.4. Doble amplificación óptica

En las secciones anteriores se observó que, salvo para condiciones particulares sobre el coeficiente fotoelástico, y a diferencia de lo visto en dispersión Raman, la máxima amplificación del proceso de generación no se logra simultáneamente con la máxima sensibilidad de detección del sistema. En el caso extremo de coeficientes fotoelásticos reales puros, la situación es, de hecho, totalmente opuesta: el máximo de la generación se logra en el centro

del modo de cavidad, donde la sensibilidad del sistema es exactamente cero. En esta sección se estudia la forma de lograr el equivalente de la doble resonancia óptica en experimentos de generación coherente de fonones acústicos. En este caso no se busca que ambos haces, pump y probe, se acoplen con el modo de la microcavidad óptica, sino que cada uno se ubique en la posición de máxima amplificación de la generación y de la detección, respectivamente. Se denominará a esta situación doble amplificación óptica o simplemente DAO. Existen dos formas prácticas de lograr la condición de DAO. El primer método consiste en utilizar dos colores, sintonizando la longitud de onda del pump con el modo óptico de la microcavidad, y la longitud de onda del probe con el máximo (o mínimo) de la derivada de la reflectividad. La implementación experimental de este método podría realizarse usando un sistema de detección asincrónica, con dos láseres acoplados electrónicamente, pero con longitudes de onda independientes [151]. Una manera alternativa podría consistir en utilizar un filtro óptico pasabanda, de manera de recortar espectralmente el pulso probe, e incidir sobre la muestra sólo con una banda espectral que abarque la mitad del modo óptico de la cavidad.

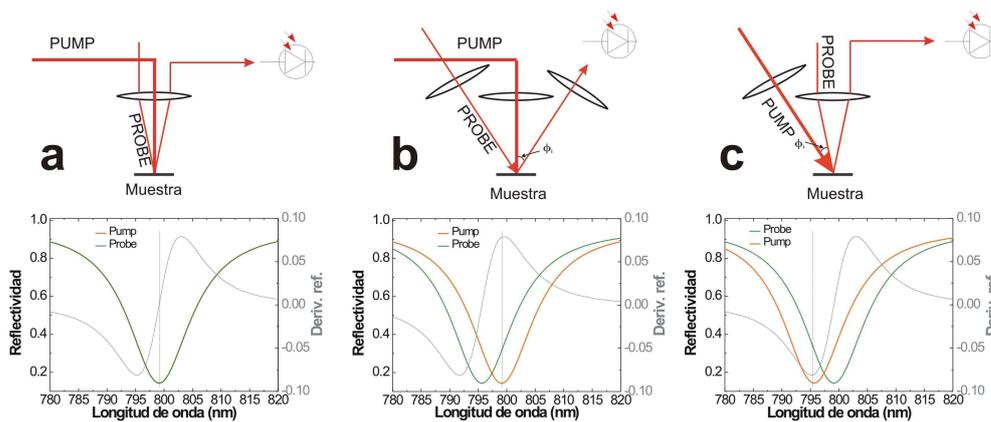


Figura 5.32: Diferentes configuraciones de medición para lograr la condición de doble amplificación óptica. Los paneles superiores muestran esquemáticamente la configuración experimental. Los paneles inferiores muestran las curvas de reflectividad para cada haz. (a) configuración usual, pump y probe tienen un pequeño ángulo de incidencia. (b) pump en incidencia normal, y probe con un ángulo de incidencia θ_i . (c) probe en incidencia normal y pump con un ángulo de incidencia θ_i . Las líneas verticales punteadas indican la posición del modo óptico en (a) y la posición de doble amplificación óptica en (b) y (c).

El segundo método para lograr la DAO se basa en una modificación del concepto de doble resonancia óptica utilizando en el contexto de la dispersión Raman en microcavidades, y consiste en hacer uso de la dispersión angular de la luz en los resonadores ópticos. En la Fig. 5.32 se ilustran las configuraciones experimentales posibles de medición (paneles superiores) para lograr la condición de DAO, y las reflectividades ópticas en el entorno del modo óptico de cavidad de los haces pump y probe (paneles inferiores). En (a) se muestra la configuración usual, con ambos haces, pump y probe incidiendo con un mismo ángulo pequeño. Puede observarse que el mínimo de la reflectividad (máxima amplificación de la

generación) no coincide ni con el máximo ni con el mínimo de su derivada (puntos donde la detección es más eficiente). Para lograr una DAO es posible sintonizar la longitud de onda del pump con el modo de cavidad en incidencia normal, y cambiar el ángulo de incidencia del probe, de manera tal que el máximo de la derivada de la reflectividad para este ángulo coincida con el mínimo del modo óptico en incidencia normal (Fig. 5.32b). De manera equivalente, es posible sintonizar la longitud de onda del probe en el mínimo de la derivada de la reflectividad en incidencia normal, y cambiar el ángulo de incidencia del pump, para sintonizar el modo de la microcavidad en ese ángulo con el mínimo de la derivada en incidencia normal (Fig. 5.32c).

A continuación se presentarán los resultados experimentales en condición de doble amplificación óptica, con una configuración de medición en donde el pump incide normalmente a la superficie de la muestra y el probe con un ángulo de $\sim 30^\circ$ (Fig. 5.32b).

Con el fin de caracterizar electrónicamente a temperatura ambiente la microcavidad estudiada en la sección anterior, en la Fig. 5.33 se muestra el espectro de fotoluminiscencia medido con una longitud de onda del láser de 647.5 nm, para la cual los espejos ópticos de la microcavidad resultan transparentes. En el mismo se pueden observar las emisiones correspondientes a los pozos cuánticos que forman el BR (a 852 nm) y al espaciador de la cavidad acústica (a 810 nm). A 795 nm se puede ver claramente un modo ancho, correspondiente a la emisión de luz a través del modo de la cavidad óptica. A temperatura ambiente, el modo óptico de cavidad se ubica a longitudes de onda menores que 810 nm, para toda posición sobre la muestra.

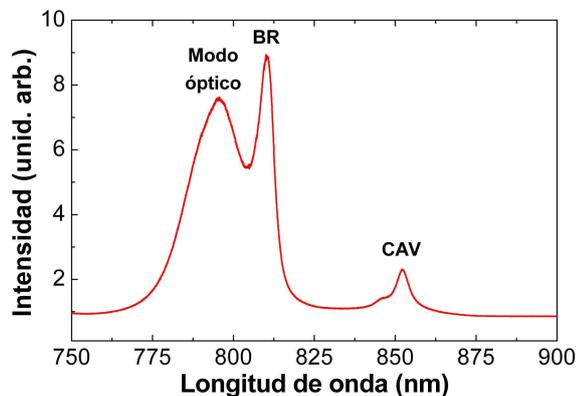


Figura 5.33: Espectro de fotoluminiscencia de la microcavidad óptica medido a temperatura ambiente. Cav y BR indican las emisiones del espaciador y de los espejos acústicos, respectivamente. Variando la posición del spot sobre la muestra, se puede desplazar el modo óptico hacia longitudes de onda menores (mayores energías).

Teniendo en cuenta que el modo óptico de cavidad se encuentra siempre por encima de las energías de transición de los pozos cuánticos, cabe preguntarse si la cavidad óptica sigue funcionando como tal. Como se verá más adelante, dada la baja *finesse* de la microcavidad óptica, y considerando que la absorción es relativamente baja, resulta que el modo óptico sigue estando muy bien definido. En la Fig. 5.34 se muestra la evolución temporal de la reflectividad medida a temperatura ambiente, para una longitud de onda de láser

$\lambda=766$ nm, cerca de la condición de resonancia óptica con ambos haces, pump y probe, incidiendo normalmente a la superficie de la muestra. En el cuadro interior se muestra un detalle entre 80 y 160 ps de la misma señal, tratada con un filtro pasabanda entre 200 y 900 GHz. Nótese el carácter coherente de las oscilaciones.

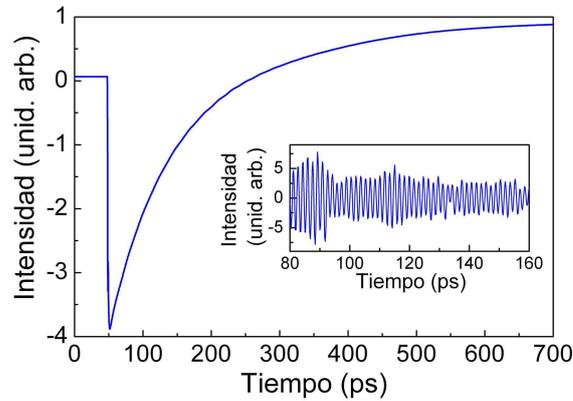


Figura 5.34: Reflectividad resuelta en tiempo medida a temperatura ambiente en la microcavidad óptica para una longitud de onda de 766 nm. Cuadro interior: detalle entre 80 y 160 ps de la misma señal, filtrada para remover el fondo correspondiente a la respuesta electrónica del sistema.

En la Fig. 5.35 se muestra la transformada de Fourier de la derivada de la señal mostrada en la Fig. 5.34. En el espectro puede observarse un único pico intenso a ~ 0.6 THz correspondiente al modo acústico confinado en ZC[1] (indicado con un círculo azul). Al estar en la región de absorción de la luz, la muestra se excita completamente, a diferencia de la excitación selectiva observada a bajas temperaturas. Esto implica que, al igual que en los experimentos de dispersión Raman fuera de resonancia, sólo se observarán los modos confinados en minigaps del centro de la minizona de Brillouin. Por otro lado, debido a los efectos de confinamiento óptico, el modo acústico de cavidad se ve amplificado.

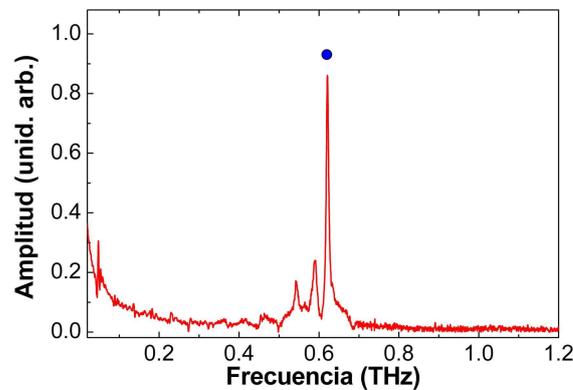


Figura 5.35: Transformada de Fourier de una medición de reflectividad resuelta en tiempo en la microcavidad óptica, medida con el láser cerca de la condición de resonancia óptica, a temperatura ambiente. Con un círculo rojo se indica el modo acústico confinado en ZC[1].

En la Fig. 5.36 se muestran los resultados de los experimentos de generación coherente de fonones coherentes con ambos haces, pump y probe, incidiendo de forma normal sobre la superficie de la muestra, en función de la longitud de onda del láser. En el panel superior se muestra la señal continua medida por el diodo para el probe reflejado por la muestra. La curva continua verde es un ajuste gaussiano de las mediciones. Se puede ver que el modo de cavidad se encuentra perfectamente definido. Este modo está centrado en ~ 760 nm y presenta un ancho de ~ 23 nm. La variación del ancho respecto a las mediciones a bajas temperaturas puede asociarse a la absorción en los espejos acústicos. En gris se muestra la derivada de este ajuste, que permite identificar fácilmente los máximos de sensibilidad del sistema (considerando constantes fotoelásticas reales para todos los materiales). En el panel inferior se muestra la amplitud del modo acústico confinado en función de la longitud de onda del láser. Las líneas verticales indican las posiciones del centro del modo óptico de cavidad, y de los máximos registrados en las señales medidas. Se pueden apreciar dos máximos superpuestos, a 752 y 765 nm. El pico ubicado a 765 nm es más intenso que el otro. Es importante remarcar que ninguno de estos máximos medidos coincide con el máximo de la generación, que se centra, a su vez, en el modo de la microcavidad. Asimismo, es posible ver que los dos máximos de la curva se localizan en las proximidades de los máximos de sensibilidad previstos para un sistema con constantes fotoelásticas reales.

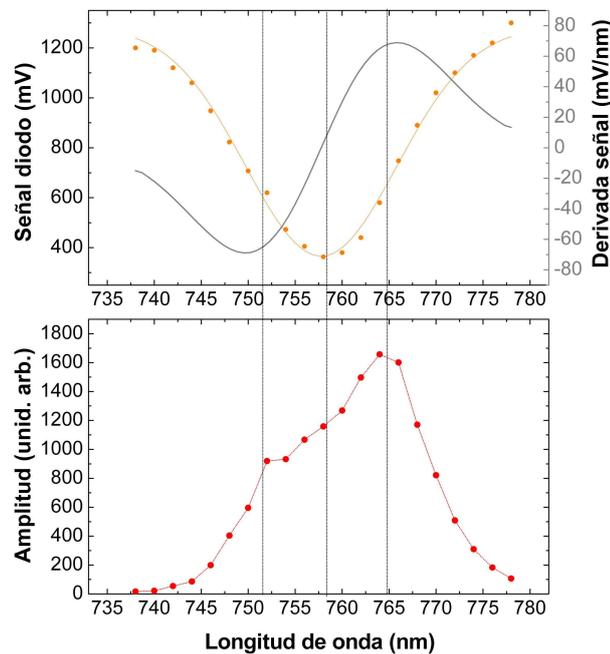


Figura 5.36: Generación coherente de fonones acústicos en una microcavidad óptica. Panel superior: señal continua medida por el diodo del probe reflejado por la muestra. En gris se muestra la derivada de la señal. Panel inferior: amplitud del modo confinado acústico en función de la longitud de onda del láser. Las líneas verticales indican las posiciones del modo de cavidad (central) y de los máximos relativos medidos.

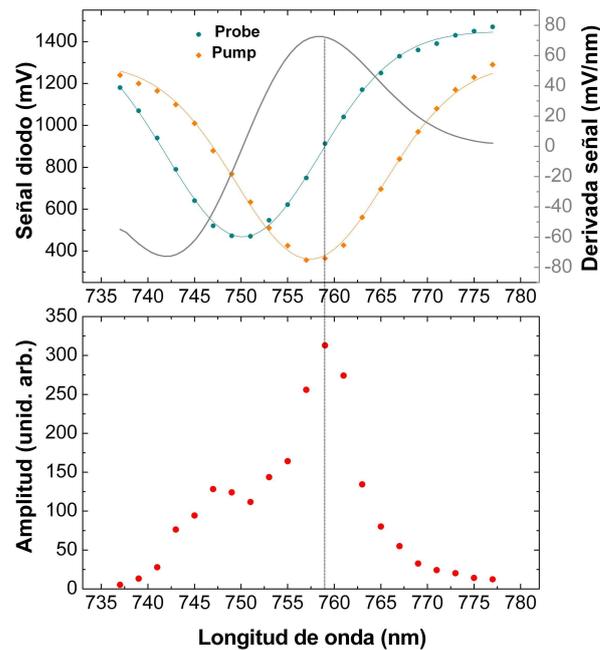


Figura 5.37: Doble amplificación óptica en una microcavidad. Panel superior: señal continua medida por los diodos para el ángulo de incidencia de los haces pump (naranja) y probe (verde) reflejados por la microcavidad. En gris se muestra la derivada de la señal correspondiente al probe. Panel inferior: amplitud del modo confinado acústico en función de la longitud de onda del láser. La línea vertical indica la posición donde tanto el pump como el probe están en condición de máxima amplificación.

Se repitió el mismo experimento cambiando la configuración geométrica de detección. En esta nueva serie de experimentos, el pump incide normal a la superficie, igual que en el caso anterior, y se focaliza sobre la muestra con una lente *achromat* de 60 mm, mientras que el probe incide con un ángulo de $\sim 30^\circ$ y se focaliza sobre el mismo spot usando una segunda lente *achromat* de 125 mm de distancia focal (ver Fig. 5.32b). En el panel superior de la Fig. 5.37 se muestran las señales de tensión continua medidas por los diodos para el ángulo de incidencia de los haces pump (naranja) y probe (verde) reflejados por la microcavidad. En gris se muestra la derivada del ajuste de los datos medidos para el probe. Deben notarse dos puntos importantes: por un lado el modo óptico de cavidad se encuentra perfectamente definido para los dos ángulos de incidencia; y por otro lado, el máximo de la derivada de la reflectividad del probe coincide con el modo de cavidad observado para el pump. Es decir que cuando el pump se encuentra sintonizado con el modo de cavidad, el probe estará sobre la región espectral de máxima sensibilidad, cumpliendo con la condición experimental de *doble amplificación óptica*. En el panel inferior de la Fig. 5.37 se muestra la amplitud medida del modo acústico de cavidad en función de la longitud de onda del láser. La línea vertical indica la posición del modo óptico de cavidad. En la señal se observan dos máximos de los cuales el más intenso se encuentra centrado en el modo óptico confinado. Este pico es el producto de la generación amplificada de fonones en la microcavidad, debido a la amplificación del campo eléctrico, combinada con la detección amplificada dada por la respuesta óptica del sistema completo. Nótese que aunque se esperaba una señal más

intensa respecto a la mostrada en la Fig. 5.36, no se observa una amplificación adicional asociada al máximo principal. Esto se debe probablemente a problemas de focalización del probe y deformación del punto focal debido a la incidencia con ángulos grandes. Por otra parte, el máximo secundario se encuentra entre las posiciones del mínimo de la reflectividad del probe y el mínimo de su derivada. Como se vió previamente, la amplificación de la detección depende tanto de las características intrínsecas de confinamiento de la microcavidad óptica, como de la naturaleza de las constantes fotoelásticas de los materiales que la forman. El máximo secundario, de menor intensidad, podría originarse bien de un compromiso entre el máximo de generación (en el centro del modo) y un máximo de la derivada de la reflectividad del probe; o bien en una contribución de la componente imaginaria de los coeficientes fotoelásticos en el espaciador óptico.

Al comparar las Figs 5.36 y 5.37 es evidente el rol del ángulo de incidencia del láser para lograr la condición de doble amplificación óptica. Observando el pico de doble amplificación en la Fig. 5.37 puede verse que no sólo aumenta su intensidad relativa respecto al otro máximo, sino que también se encuentra mejor definido. Existen, sin embargo, dos dificultades experimentales para optimizar la condición de doble amplificación óptica. En incidencia normal o con ángulos pequeños es posible usar la reflexión del haz sobre la muestra, que pasa nuevamente por la lente de focalización, para determinar la distancia focal de una manera aproximada. El uso del interferómetro de Sagnac permite definir precisamente esta distancia focal. La elección de ángulos de incidencia muy diferentes para los haces pump y probe exige el uso de dos lentes de focalización. La primer dificultad que se encuentra en esta configuración es la determinación del punto focal de la lente que se utiliza con el probe. Este inconveniente debería ser salvable con pequeñas modificaciones en el arreglo experimental. La segunda dificultad, por otro lado, es intrínseca a la incidencia en ángulo y es la variación de la densidad de potencia por la deformación del punto focal. Estos dos factores producen una disminución general de la amplitud de las señales medidas, como puede observarse al comparar las escalas en las Figs 5.36 y 5.37.

5.4. Conclusiones

Es este capítulo se repasaron las nociones generales sobre microcavidades ópticas, y resonadores de luz y sonido. Mediante experimentos y simulaciones de dispersión Raman en condición de doble resonancia óptica, se estudió la influencia del confinamiento óptico en la generación de hipersonido incoherente. Asimismo se analizaron los cambios en las reglas de selección y efectos de amplificación de las señales debidos, por un lado, al confinamiento del campo eléctrico, y por otro lado, a la resonancia con un estado electrónico confinado en un pozo cuántico.

Haciendo uso de estos conceptos, este capítulo estuvo centrado en el estudio y análisis de la generación y la detección de hipersonido coherente en condición de confinamiento fotónico en una microcavidad óptica. Las microcavidades ópticas amplifican la generación coherente de fonones a través de la amplificación resonante del campo eléctrico. Esta amplificación está directamente relacionada con la *finesse* de la microcavidad. Por otro lado, se ha visto como el proceso de detección puede ser también amplificado aumentando la

finesse de la microcavidad. La sensibilidad de la detección no sólo depende de las características intrínsecas de la microcavidad óptica, sino que también está determinada por las características fotoelásticas de los materiales que la forman. Más aún, la sensibilidad de estos sistemas podría convertirse en una herramienta útil para la determinación precisa de constantes fotoelásticas. Además de las características de amplificación del campo eléctrico, las microcavidades modifican esencialmente los espectros que pueden ser generados y detectados de un modo tal que las excitaciones generadas por el pump son las mismas que las detectadas por el probe (excitación y detección de fonones acústicos con $q \approx 2k$ y $q \approx 0$ simultáneamente). Las máximas señales alcanzadas en este tipo de configuraciones están limitadas por la reflectividad y características fotoelásticas del sistema, y por la máxima frecuencia de los fonones que se estudian. Debe recordarse que el ancho temporal de los pulsos del láser determina la máxima frecuencia de los fonones acústicos coherentes que puede ser excitados y detectados. De esta manera, dada una frecuencia de fonones, queda determinado el máximo ancho temporal de los pulsos de luz utilizados, y por lo tanto, el máximo factor de calidad que puede tener una cavidad óptica. En sistemas que implican la caracterización de materiales, donde las vibraciones características son de unos pocos GHz, la *finesse* de la microcavidad puede ser aumentada considerablemente respecto de los casos estudiados en el presente trabajo (rango GHz-THz), aumentando de la misma manera la amplificación de la generación y la sensibilidad de las estructuras.

Continuando con el análisis de la amplificación de señales, y extendiendo las ideas anteriormente presentadas en el contexto de la dispersión Raman en condición de doble resonancia óptica, se demostró experimentalmente el concepto de doble amplificación óptica, que consiste en lograr simultáneamente las condiciones de máxima amplificación de los procesos de generación y detección de fonones acústicos coherentes variando el ángulo de incidencia de uno de los haces. Los sistemas y técnicas estudiados en este capítulo resultan de especial interés para el desarrollo de fuentes monocromáticas de fonones acústicos y para el estudio de sistemas en donde las señales acústicas o el acoplamiento con la luz son débiles.

Capítulo 6

Superestructuras formadas por cavidades acústicas acopladas

Teniendo en cuenta el paralelismo entre los pozos cuánticos y las cavidades ópticas [37], y entre estas últimas y las cavidades fonónicas, recientemente en el marco de una tesis de maestría [59] demostramos teóricamente la aparición de minibandas y minigaps en sistemas periódicos cuya celda unidad son cavidades acústicas, oscilaciones de Bloch de fonones acústicos, y la posibilidad de generar estructuras con potenciales fonónicos efectivos *ad hoc*, entre otros [40, 41]. Siguiendo nuestra propuesta original, experimentalmente se demostraron las oscilaciones de Bloch en sistemas acústicos en el rango kHz-MHz [152, 153]. En nanofonónica, y en el rango GHz-THz, estos sistemas y fenómenos pueden ser estudiados tanto en el dominio temporal, mediante experimentos de transmisión y generación coherente de fonones, como en el dominio espectral mediante experimentos de dispersión Raman de alta resolución.

En el presente capítulo se abordará el estudio teórico y experimental de sistemas formados por múltiples cavidades acústicas acopladas en el rango GHz-THz. Mediante experimentos de dispersión Raman se estudiarán los efectos de acoplamiento en una “molécula fonónica”, estructura formada por dos nanocavidades acústicas separadas por un espejo de hipersonido. Los estados de Wannier-Stark y las oscilaciones de Bloch fonónicas se estudiarán tanto en el dominio espectral como en el dominio temporal, analizando los efectos de acoplamiento, y la dinámica de fonones acústicos en estructuras complejas.

Este capítulo se encuentra dividido en tres secciones. En la Sec. 1 se introducen las características generales y el estudio por dispersión Raman de una molécula fonónica formada por dos nanocavidades idénticas. El estudio de estructuras formadas por múltiples nanocavidades acústicas acopladas, las oscilaciones de Bloch de fonones acústicos, y su caracterización en experimentos de dispersión Raman y de generación coherente de fonones acústicos se presenta en la Sec. 2. Finalmente en la Sec. 3 se resumen las conclusiones y perspectivas futuras correspondientes al capítulo.

6.1. Moléculas nanofonónicas

Existen trabajos en el área de la óptica [154–157] en los que se estudia el acoplamiento entre dos microcavidades y los efectos de localización del campo eléctrico. Las aplicaciones posibles de estas estructuras incluyen emisión amplificada en dos colores (VCSELs¹ de dos colores) y amplificación de campos eléctricos en procesos de dispersión Raman resonante [25, 158]. Teniendo en cuenta el paralelismo existente entre las cavidades acústicas y ópticas se diseñaron estructuras formadas por dos cavidades acústicas acopladas. A continuación se describirán las características generales de estos sistemas, y cómo influyen los distintos parámetros de diseño en la respuesta de estos dispositivos.

6.1.1. Acoplamiento de dos nanocavidades acústicas

Una doble cavidad acústica, o molécula fonónica, está constituida por dos espejos de Bragg laterales (E_i y E_d) de N_i y N_d períodos respectivamente, y dos espaciadores idénticos (Cav_1 y Cav_2) separados por un espejo central (E_c) de N_c períodos. En la Fig. 6.1 se muestra el esquema de una molécula fonónica inmersa en un medio de GaAs.

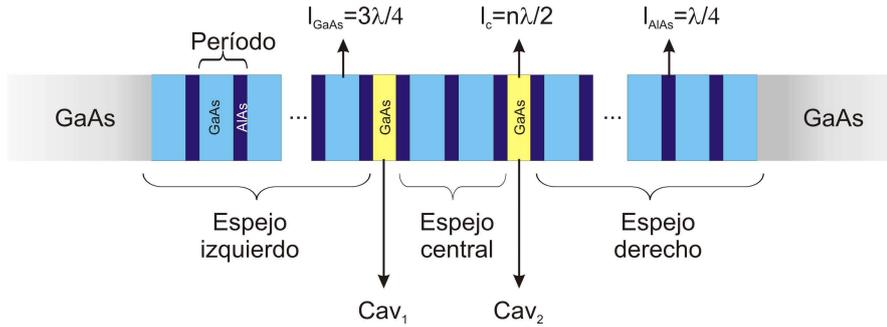


Figura 6.1: Esquema de la molécula fonónica formada por dos nanocavidades acústicas acopladas, inmersa en un medio homogéneo de GaAs.

El acoplamiento entre los modos de las cavidades produce un desdoblamiento. Este desdoblamiento de los modos fonónicos está determinado por la reflectividad del espejo central, que determina el grado de acoplamiento entre las dos cavidades. El comportamiento es análogo al de los estados electrónicos en moléculas diatómicas. Si las cavidades son idénticas, la equivalencia puede plantearse con la molécula de H_2 , donde la interacción de los dos átomos causa un desdoblamiento de los niveles degenerados en dos orbitales *bonding* y *antibonding*. En las moléculas electrónicas la intensidad del acoplamiento está dada por las fuerzas de Coulomb entre los núcleos y los electrones. En el caso de la molécula fonónica, está determinada por la estructura, y por lo tanto puede ser diseñada y modificada. Si los átomos son diferentes (como en el caso de la molécula CO), las energías de los orbitales de los átomos individuales serán más o menos afectadas por el acoplamiento dependiendo del grado de similitud entre los átomos.

Para estudiar las características generales de este tipo de sistemas se considerará una estructura con espejos laterales de 10 períodos de GaAs/AlAs de 5.93/2.35 nm de espesor,

¹Vertical Cavity Surface Emitting Lasers

un espejo central de 4.5 períodos de AlAs/GaAs con los mismos espesores que los utilizados en los espejos laterales y ambas cavidades de GaAs de espesor λ correspondiente a 20 cm^{-1} (7.90 nm). En la Fig. 6.2 se muestra la reflectividad acústica de esta estructura en función de la energía. La región de alta reflectividad característica de los espejos se extiende desde ~ 19 a $\sim 21 \text{ cm}^{-1}$. Dentro de este stop-band se observan dos mínimos de reflexión en 19.75 y 20.25 cm^{-1} (indicados con flechas) correspondientes a los modos que surgen del acoplamiento de las cavidades individuales. En el cuadro interior se detalla la región de los modos de alta transmisión del sistema; con Δ se indica la diferencia de energía entre los mismos. En la Fig. 6.3 se puede observar la distribución de campo fonónico correspondiente al modo de menor energía dentro de la estructura (el otro perfil presenta un aspecto similar). Para mayor claridad se incluye el perfil de impedancias acústicas de la estructura. Nótese como las mayores intensidades de desplazamiento acústico se concentran en las cavidades.

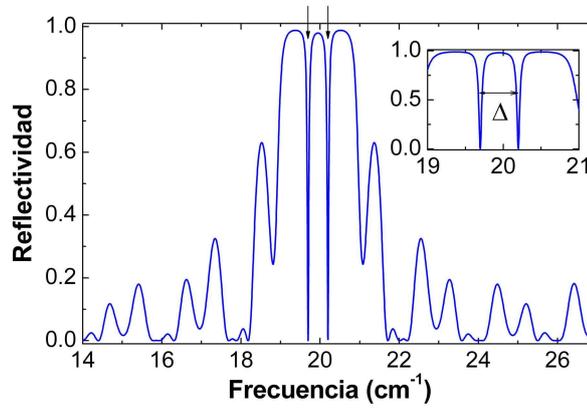


Figura 6.2: Reflectividad acústica de un sistema formado por dos cavidades acopladas. Las flechas indican los modos de cavidad. En el cuadro interior se muestra un detalle de los modos, donde Δ es la separación energética de los modos.

Al igual que en el caso de la molécula de H_2 , los dos modos de la doble cavidad poseen diferente paridad respecto del centro de la estructura. Teniendo en cuenta la similitud entre ambos sistemas, es posible analizar la dinámica de la molécula fonónica definiendo $|S\rangle$ y $|A\rangle$ como los autoestados simétrico y antisimétrico respectivamente, y $|1\rangle$ y $|2\rangle$ como los modos que describen la localización del paquete de ondas en la cavidad 1 y 2 respectivamente (ver Fig. 6.1). Las relaciones entre estos cuatro estados están dadas por:

$$|1\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|S\rangle + |A\rangle) \quad (6.1)$$

$$|2\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|S\rangle - |A\rangle) \quad (6.2)$$

Definiendo el estado $|1; t\rangle$ como aquel en que la molécula se encuentra en el estado $|1\rangle$ en el instante $t = 0$, la evolución temporal está regida por:

$$|1; t\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(e^{-i\omega_a t}|S\rangle + e^{-i\omega_b t}|A\rangle) \quad (6.3)$$

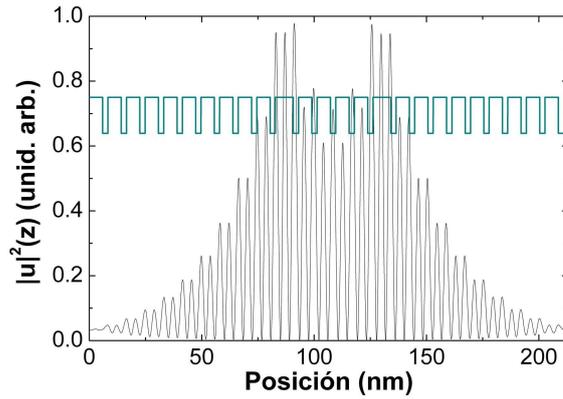


Figura 6.3: Distribución del campo fonónico en la estructura de la molécula fonónica, correspondiente al modo confinado de menor frecuencia.

donde ω_a y ω_b son las frecuencias de los dos modos de la doble cavidad. La proyección del estado $|1; t\rangle$ sobre $|1\rangle$ está dada por:

$$|\langle 1|1; t\rangle|^2 = \left| \left(\frac{1}{\sqrt{2}}\langle S| + \frac{1}{\sqrt{2}}\langle A| \right) \cdot \left(\frac{1}{\sqrt{2}}e^{-i\omega_a t}|S\rangle + \frac{1}{\sqrt{2}}e^{-i\omega_b t}|A\rangle \right) \right|^2 \quad (6.4)$$

$$|\langle 1|1; t\rangle|^2 = \frac{1}{2} + \frac{1}{2}\cos((\omega_a - \omega_b)t) \quad (6.5)$$

Cuando esta función toma valor 1, el sistema se halla en el estado $|1\rangle$, mientras que si toma valor 0 se encuentra en el estado $|2\rangle$. En cualquier otro caso, el paquete de ondas se encuentra distribuido de alguna manera entre las dos cavidades. Teniendo en cuenta esto, en $t = T_n/2 \equiv \frac{\pi}{\Delta}(2n + 1)$, con n un número entero, la molécula se encuentra en el estado $|2\rangle$, y en $t = T_n$ se encuentra en el estado $|1\rangle$. La frecuencia angular característica de oscilación de la molécula está determinada entonces por la separación energética de los modos $\Delta = \omega_a - \omega_b$ (ver ec. 6.5).

Un análisis similar puede realizarse para un sistema en el que el estado inicial se localiza preferentemente en uno de los dos modos de la estructura. Este sería el caso, por ejemplo, de una excitación con un pulso gaussiano en donde la media de la distribución energética del pulso no se ubica en el centro de los dos modos. De esta manera el estado inicial puede describirse como:

$$|i\rangle = \delta|S\rangle + \gamma|A\rangle \quad (6.6)$$

con $|\delta|^2 + |\gamma|^2 = 1$, y la evolución temporal de este estado está dada por:

$$|i; t\rangle = \delta e^{-i\omega_a t}|S\rangle + \gamma e^{-i\omega_b t}|A\rangle \quad (6.7)$$

La proyección del estado $|i; t\rangle$ en el estado $|1\rangle$ está dada por:

$$|\langle 1|i; t\rangle|^2 = \left| \left(\frac{1}{\sqrt{2}}\langle S| + \frac{1}{\sqrt{2}}\langle A| \right) \cdot (\delta e^{-i\omega_a t}|S\rangle + \gamma e^{-i\omega_b t}|A\rangle) \right|^2 \quad (6.8)$$

$$|\langle 1|i; t\rangle|^2 = \frac{1}{2}(\delta^2 + \gamma^2) + \delta\gamma\cos(\Delta t) \quad (6.9)$$

En este caso se observa que salvo para combinaciones particulares de δ y γ , por ejemplo $(\delta = 1, \gamma = 0)$, $(\delta = 0, \gamma = 1)$, y $(\delta = \gamma = 1/\sqrt{2})$, el sistema nunca se encontrará totalmente en el estado $|1\rangle$ o en el estado $|2\rangle$.

Utilizando el formalismo descrito en la Sec. 2.1, en la Fig. 6.4 se puede observar la evolución temporal de un paquete de ondas gaussiano con $2\sigma = 1.0 \text{ cm}^{-1}$ centrado en 20 cm^{-1} , i.e. simétrico respecto a los autoestados $|A\rangle$ y $|S\rangle$, incidiendo desde la cara izquierda de la muestra. En esta figura, regiones más claras representan campos fonónicos más intensos. La línea vertical indica la interfaz entre la molécula fonónica y el medio de GaAs. En el extremo inferior izquierdo se observa una reflexión inicial debida a uno de los espejos laterales. En este punto es en donde se reflejan principalmente las ondas correspondientes a las energías del pulso incidente en las regiones de alta reflectividad que se encuentran en el stop-band. A continuación, el batido de las ondas produce una oscilación cuyo período está dado por la separación energética Δ de los modos de la estructura (ver ec. 6.5). Asimismo se observan *colas* en el paquete de ondas hacia los bordes del sistema y una atenuación de la intensidad de campo fonónico con el tiempo. Estas se deben al coeficiente de transmisión distinto de cero de los espejos laterales relacionados con el ancho de los modos en la Fig. 6.2. Aumentando la reflectividad de estos espejos, se disminuye la intensidad del hipersonido transmitido hacia el sustrato y el decaimiento de las oscilaciones.

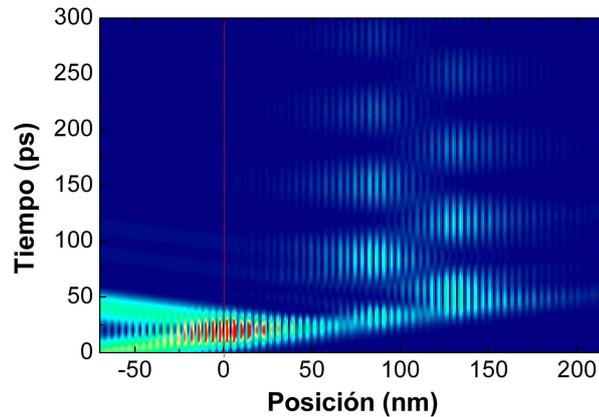


Figura 6.4: Evolución temporal de un paquete de ondas gaussiano de $2\sigma = 1.0 \text{ cm}^{-1}$ centrado en 20 cm^{-1} , incidiendo a $t=0$ sobre la cara izquierda de una doble cavidad. La estructura consiste en dos espejos laterales de 10 períodos de GaAs/AlAs, un espejo central de 4.5 períodos y dos cavidades de GaAs de espesor λ . Toda la estructura está calculada para 20 cm^{-1} .

Variando el número, los materiales, y los espesores de las capas es posible realizar una ingeniería de la molécula fonónica controlando, por ejemplo, la separación y el ancho de los modos, el tiempo de persistencia y período de las oscilaciones, etc. A continuación se estudiará cómo influyen la estructura de los espejos y los espesores de las cavidades en las respuestas temporal y espectral de una molécula fonónica.

Partiendo de la analogía entre la molécula de H_2 y la molécula fonónica, es claro que la reflectividad del espejo central determina la separación entre los modos de una estructura formada por dos cavidades acústicas acopladas. De igual modo, esta separación determina

la frecuencia de batido del sistema. En la Fig. 6.5 se grafica la separación energética de los modos de la molécula fonónica en función del número de períodos que forman el espejo central. Esta separación varía desde 0.94 cm^{-1} para un espejo con 1.5 períodos a 0.19 cm^{-1} para un espejo central de 9.5 períodos. En una molécula fonónica, a medida que se incrementa el número de períodos del espejo central, disminuye su transmisión, disminuyendo por lo tanto el acoplamiento entre ambas cavidades, lo que resulta en una separación energética menor de los modos de la estructura. Cabe mencionar que en espectroscopía Raman, mediciones con resoluciones mejores que 1 cm^{-1} representan un desafío experimental. Para el estudio de los sistemas de cavidades acústicas acopladas se requiere el uso de configuraciones especiales de alta resolución, como por ejemplo el modo triple aditivo del espectrómetro utilizado (ver Sec. 2.3.1).

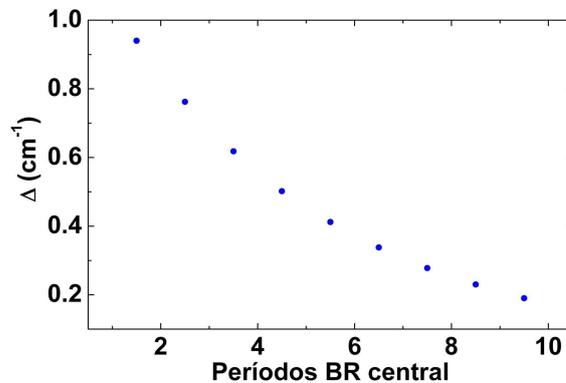


Figura 6.5: Separación energética entre los modos de una molécula fonónica en función del número de períodos que forman el espejo central.

El ancho de los modos es fuertemente dependiente de la reflectividad de los espejos laterales; esta reflectividad puede variarse modificando el contraste de impedancias acústicas de los materiales y/o el número de períodos que forman el espejo. A medida que se aumenta el número de períodos, el ancho de los modos disminuye y su posición permanece constante.

Una condición que debe cumplirse para que los dos modos puedan distinguirse es que la separación energética entre ambos sea mayor que el ancho de los mismos. Realizando un análisis similar al desarrollado para cavidades ópticas acopladas por Stanley *et al.* [154] se determina que el desdoblamiento de los modos fonónicos existe siempre y cuando la siguiente condición se cumpla:

$$R_c \leq \frac{4R_0}{(1 + R_0)^2} \quad (6.10)$$

donde R_c y R_0 son las reflectividades de los espejos central y laterales respectivamente. La ec. 6.10 esencialmente corresponde a imponer que la vida media debido al escape a través de R_0 lleve a un ancho de modo menor que la separación entre los estados confinados.

Los espaciadores de las cavidades determinan la posición de los modos dentro del stop-band de los espejos; y el acoplamiento de las cavidades individuales determina el desdoblamiento de los mismos. En el caso de dos cavidades acústicas idénticas con espa-

ciadores de espesor $n\lambda/2$, es posible realizar un ajuste fino del ancho de los modos y de su posición cambiando el valor n . La separación entre los dos modos de la molécula fonónica y el ancho de los mismos disminuye cuando se aumenta el espesor de los espaciadores [41, 59].

A continuación se analizará cómo se comporta un sistema en el que las dos cavidades no son exactamente iguales. Se supondrá que este sistema aún presenta dos modos confinados dentro del stop-band de los espejos que forman la estructura. Nuevamente $|1\rangle$ representará el estado en que el paquete de ondas se encuentra concentrado en la cavidad de la izquierda. Siendo $|X\rangle$ y $|Y\rangle$ los autoestados del sistema, el estado $|1\rangle$ puede escribirse como:

$$|1\rangle = \alpha|X\rangle + \beta|Y\rangle \quad (6.11)$$

donde $|\alpha|^2 + |\beta|^2 = 1$ y $\alpha \neq \beta$. Si las energías de los modos son ω_x y ω_y , entonces la evolución temporal del estado $|1\rangle$ está dada por:

$$|1; t\rangle = \alpha e^{-i\omega_x t}|X\rangle + \beta e^{-i\omega_y t}|Y\rangle \quad (6.12)$$

y la proyección del estado $|1; t\rangle$ sobre el estado $|1\rangle$ está dada por:

$$|\langle 1|1; t\rangle|^2 = |(\alpha\langle X| + \beta\langle Y|) \cdot (\alpha e^{-i\omega_x t}|X\rangle + \beta e^{-i\omega_y t}|Y\rangle)|^2 \quad (6.13)$$

$$|\langle 1|1; t\rangle|^2 = \alpha^4 + \beta^4 + 2\alpha^2\beta^2 \cos((\omega_x - \omega_y)t) \quad (6.14)$$

Analizando los casos extremos de la función coseno se observa que:

- si $\cos(\Delta t) = 1 \Rightarrow |\langle 1|1; t\rangle|^2 = (\alpha^2 + \beta^2)^2 = 1$
- si $\cos(\Delta t) = -1 \Rightarrow |\langle 1|1; t\rangle|^2 = (\alpha^2 - \beta^2)^2 > 0$

Por lo que el paquete de onda o bien se localiza en la primera cavidad ($|1\rangle$) o bien se encuentra distribuido entre las dos cavidades, pero en ningún momento se localiza totalmente en la cavidad 2 ($|2\rangle$).

6.1.2. Dispersión Raman en moléculas fonónicas

En este apartado se estudian las características principales de los espectros de dispersión Raman en una molécula fonónica, como método para caracterizar sus estados vibracionales y evidenciar los efectos de acoplamiento.

En la Fig. 6.6 se pueden observar los espectros Raman calculados para una longitud de onda del láser de excitación de 514.5 nm, para una estructura formada por dos cavidades acopladas como la descrita en la Fig. 6.4. Para los valores de las constantes fotoelásticas, densidad y velocidad del sonido del GaAs y del AlAs se utilizaron valores publicados anteriormente [135, 136]. Como índices de refracción se utilizaron $4.2+0.37i$ y 3.29 para el GaAs y el AlAs, respectivamente. Se grafican los espectros correspondientes a las geometrías backscattering -BS- (línea punteada) y forward scattering -FS- (línea continua). También se incluye en el panel superior la curva de reflectividad acústica para mayor claridad en la asignación de los picos y pozos. En el espectro BS se pueden observar dos picos intensos a 16.8 y 22.0 cm^{-1} , junto con una serie de picos débiles distribuidos a lo

largo de toda la banda energética mostrada. En el espectro FS se observa un pico a un lado del stop-band, correspondiente al modo característico del borde del espejo. Con una intensidad muy baja se pueden observar un pico y un pozo (*dip* en inglés²) en el centro del stop-band que pueden asociarse a los modos de la molécula fonónica. A ambos lados del stop-band se pueden distinguir varios picos de menor intensidad.

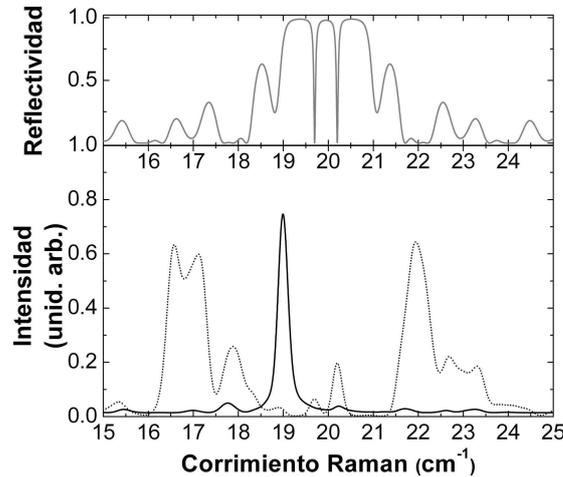


Figura 6.6: Espectros Raman simulados para una longitud de onda del láser $\lambda_L=514.5$ nm, en geometrías BS (línea punteada) y FS (línea continua) para una molécula fonónica con cavidades de espesor λ para una frecuencia de 20 cm^{-1} . En el cuadro superior se incluye la reflectividad acústica calculada como referencia.

Los espectros Raman cambian significativamente su aspecto cuando se modifica la paridad del factor n en el espesor $n\lambda/2$ de las cavidades que forman la molécula fonónica. En la Fig. 6.7 se muestran los espectros Raman conservando la estructura considerada en el caso anterior y la misma longitud de onda, pero cambiando el espesor de los espaciadores a $\lambda/2$. En el caso de los espectros Raman BS se distingue un conjunto de 6 picos, 4 (2) del lado de bajas (altas) frecuencias del stop-band. Observando el espectro correspondiente a la geometría FS se puede notar que el modo del borde del espejo se encuentra siempre presente, independientemente de la paridad de n . Sin embargo, en el caso de n impar se observa claramente un pico correspondiente al modo de mayor frecuencia de la molécula fonónica.

Es importante mencionar que las características generales de estos espectros se conservan si se mantiene la paridad de n . Es decir, los espectros correspondientes a estructuras con espaciadores λ , 2λ , 3λ , etc. serán similares entre sí. Lo mismo sucederá en el caso de las estructuras con espaciadores $\lambda/2$, $3\lambda/2$, $5\lambda/2$, etc...

Para realizar los experimentos de dispersión Raman, se diseñó una muestra que consiste en dos nanocavidades acústicas acopladas inmersas en una microcavidad óptica para lograr una amplificación de las señales y tener acceso a las características BS y FS simultáneamente. La muestra fue crecida por epitaxia de haces moleculares sobre un sustrato de GaAs orientado en la dirección (001). El esquema de la estructura se muestra en la Fig. 6.8.

²en adelante se utilizará la palabra en inglés

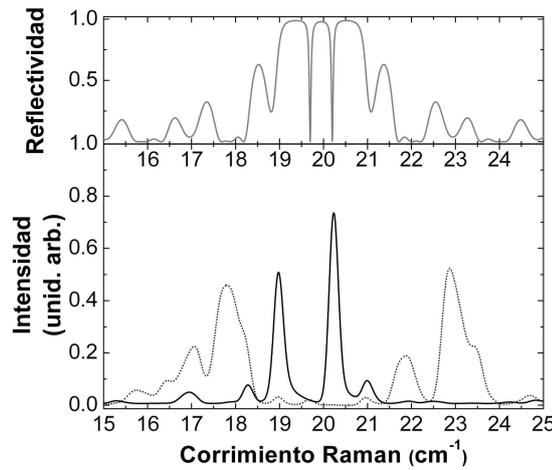


Figura 6.7: Espectros Raman simulados para una longitud de onda del láser $\lambda_L=514.5$ nm en geometrías BS (línea punteada) y FS (línea continua) para una molécula fonónica con cavidades de espesor $\lambda/2$. En el cuadro superior se incluye la reflectividad acústica calculada como referencia.

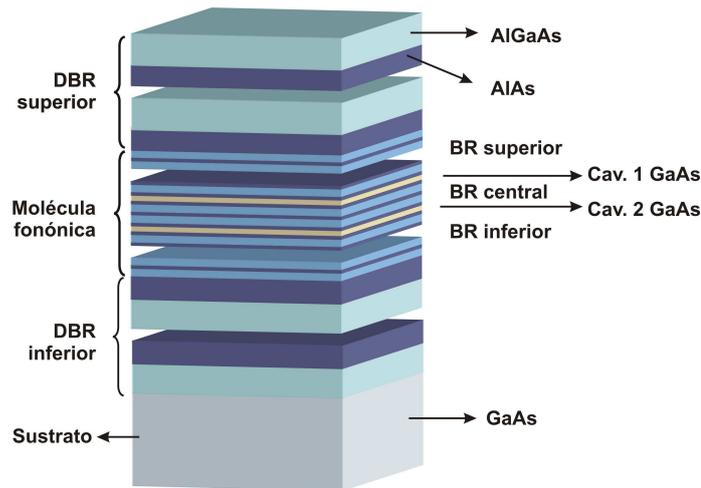


Figura 6.8: Esquema de la estructura estudiada por dispersión Raman formada por una molécula fonónica dentro de una microcavidad óptica.

La molécula fonónica está formada por dos espejos externos de GaAs/AlAs (5.9/2.3) nm de 13 períodos, y dos espaciadores acústicos (3.95 nm GaAs) separados por un espejo central de 2.5 períodos de AlAs/GaAs (2.3/5.9 nm). La relación de espesores de los espejos corresponde a $(3\lambda/4, \lambda/4)$, mientras que las cavidades acústicas corresponden a un espesor $\lambda/2$; donde λ se calculó para una frecuencia nominal de 20 cm^{-1} . La molécula fonónica completa constituye una cavidad λ_l de la microcavidad óptica, donde λ_l está optimizado para 800 nm. El espejo óptico superior (inferior) está formado por 10 (14) períodos de $\text{Al}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{As}/\text{AlAs}$ (59.7/69.3 nm).

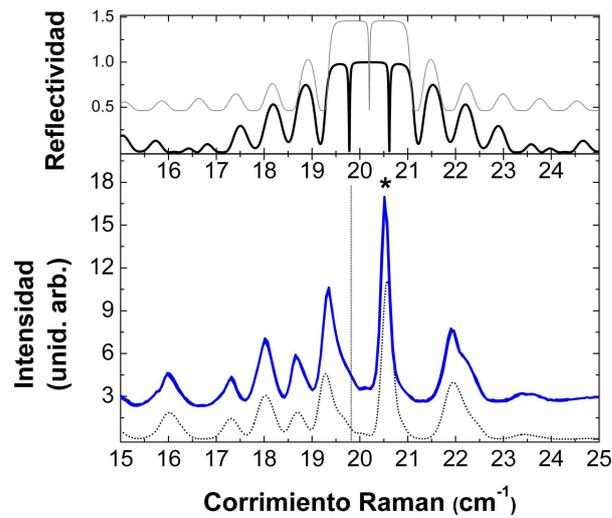


Figura 6.9: Panel superior: Reflectividad acústica calculada para una molécula fonónica (línea continua) y para una cavidad acústica simple (línea punteada). La última curva fue desplazada verticalmente para mayor claridad. Panel inferior: espectros de dispersión Raman medido (línea continua) a temperatura ambiente con una longitud de onda del láser $\lambda_L=820$ nm y calculado usando un modelo fotoelástico (línea punteada). El experimento fue realizado a temperatura ambiente.

En el panel superior de la Fig. 6.9 se muestra la reflectividad acústica calculada de la molécula fonónica (curva negra). Se pueden observar los dos modos confinados, a 19.8 y 20.6 cm^{-1} , que resultan del acoplamiento de los modos acústicos individuales con energías sin acoplar de 20.2 cm^{-1} . Estos modos presentan una deformación acústica con diferente paridad con respecto al centro de la estructura. La reflectividad calculada de una nanocavidad simple se muestra en el mismo panel (curva gris, desplazada verticalmente para mayor claridad).

Se midieron espectros de dispersión Raman en geometría BS usando un láser sintonizable de titanio-zafiro. Los espectros fueron obtenidos usando un espectrómetro triple T64000 Jobin-Yvon con una resolución en modo aditivo de 0.15 cm^{-1} . Los experimentos fueron realizados a temperatura ambiente en condición de doble resonancia óptica (véase Sec. 5.2.2), con una longitud de onda del láser $\lambda_L=820$ nm. En el Cap. 5 se demostró que es posible observar modos con $q = 0$ (como así también modos confinados de cavidad) usando una microcavidad óptica. Sin embargo, dado que los modos acoplados de la molécula fonónica presentan una simetría diferente respecto al centro de la molécula fonónica, sólo uno de ellos es Raman activo. En el panel inferior de la Fig. 6.9 se muestran los espectros Raman medido (línea gruesa) y simulado (línea punteada) de la molécula fonónica. Se puede distinguir un pico intenso a ~ 20.5 cm^{-1} , indicado con un asterisco. Este pico corresponde a uno de los modos acústicos confinados desdoblados por el acoplamiento. El modo está claramente desplazado hacia el lado de altas frecuencias respecto al modo de una cavidad simple (20.2 cm^{-1}). El dip indicado con una línea vertical punteada está relacionado con el modo de baja frecuencia, corrido también respecto al modo desacoplado. Existen picos

adicionales ubicados a ambos lados del minigap. Estos modos surgen de desplazamientos acústicos distribuidos a lo largo de la estructura (modos de las superredes que forman los BR).

Las simulaciones fueron realizadas usando un modelo fotoelástico, teniendo en cuenta los campos confinados tanto acústicos como ópticos. Como valores de las constantes fotoelásticas se utilizaron 28.3, 250, y 125 para las capas de AlAs, GaAs en los espejos acústicos y GaAs en los espaciadores de las nanocavidades, respectivamente. Cabe mencionar que las transiciones electrónicas en los espejos fonónicos y en las cavidades se estiman en 813 y 770 nm, respectivamente. El espectro fue convolucionado para dar cuenta de los efectos de la resolución experimental finita (0.15 cm^{-1}). Una vez más se puede observar que, por razones de simetría, sólo uno de los dos modos es Raman activo. Es notable como todos los detalles del espectro experimental son reproducidos excelentemente en el espectro simulado: picos, dips y oscilaciones de tamaño finito, lo cual prueba que los experimentos Raman han permitido efectivamente la observación de un modo de molécula fonónica.

6.2. Formación de bandas y oscilaciones de Bloch en sistemas acústicos

Los modos confinados de una cavidad corresponden a estados discretos de energía dentro del stop-band; y su ancho queda determinado por el número de períodos de los espejos. Estos modos fonónicos confinados pueden considerarse como el equivalente de los estados electrónicos de un átomo o de un pozo cuántico. En esta sección se mostrará que cuando se acopla un número grande de cavidades idénticas, los modos discretos pasan a formar una banda fonónica como sucede en el caso electrónico. Se analizará la naturaleza de estas bandas, y su formación a partir del acoplamiento de un número variable de cavidades acústicas idénticas. Del mismo modo, se estudiará cómo variando la energía de las cavidades que forman la estructura, es posible introducir un potencial fonónico efectivo dando lugar al equivalente acústico de las oscilaciones de Bloch, y cómo es posible caracterizarlo mediante experimentos de dispersión Raman y de generación coherente de fonones acústicos.

6.2.1. Acoplamientos de múltiples nanocavidades acústicas

Siguiendo un procedimiento similar al utilizado para deducir la relación de dispersión de los fonones replegados en el Cap. 1, es posible deducir la estructura de bandas de un arreglo infinito de cavidades.

Debe notarse que el sistema de ecuaciones a plantear, y por lo tanto la dificultad del problema a resolver depende del número de capas que componen esta celda unidad. En la Fig. 6.10 se muestra un esquema de la celda unidad del sistema periódico analizado, formado por un espejo de 1.5 períodos de AlAs/GaAs con relación de espesores ($\lambda/4$, $3\lambda/4$) y una cavidad de GaAs de espesor λ . En el mismo esquema se indican los espesores genéricos de cada capa, y la posición de las interfaces en un eje coordenado.

Para cada capa i planteamos una solución de la ecuación de ondas de la forma:

$$u_i(z) = A_i e^{ik_i x} + B_i e^{-ik_i x} \quad (6.15)$$

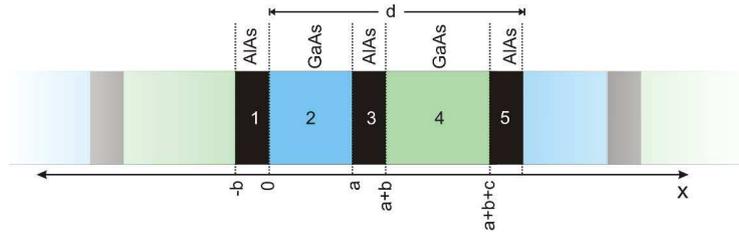


Figura 6.10: Esquema de un sistema de cavidades acopladas y nomenclatura para la numeración de las diferentes capas que forman el sistema. En este arreglo, cada celda unidad tiene un espesor d y está formada por un espejo de 3 capas y un espaciador. Las capas 1, 2 y 3 forman el espejo, y la capa 4 corresponde al espaciador.

donde k es el vector de onda correspondiente a cada material.

El punto x en la región 5 se corresponde con el punto $x - d$ en la región 1, y aplicando el teorema de Bloch se obtiene,

$$u_5(z) = e^{i\mathbf{K}d}(A_1 e^{ik_1(x-d)} + B_1 e^{-ik_1(x-d)}) \quad (6.16)$$

Se plantean las condiciones de contorno correspondientes a la continuidad del desplazamiento y de la tensión en las interfaces:

$$u_i(d_i) = u_{i+1}(d_i) \quad (6.17)$$

$$C_i \left. \frac{\partial u_i(d_i)}{\partial z} \right|_{x=d_i} = C_{i+1} \left. \frac{\partial u_{i+1}(d_i)}{\partial z} \right|_{x=d_i} \quad (6.18)$$

donde d_i es la posición de la interfaz entre las capas i e $i + 1$. Reemplazando las soluciones propuestas para cada capa,

$$A_1 + B_1 = A_2 + B_2 \quad (6.19)$$

$$A_2 e^{ik_2 a} + B_2 e^{-ik_2 a} = A_3 e^{ik_3 a} + B_3 e^{-ik_3 a} \quad (6.20)$$

$$A_3 e^{ik_3(a+b)} + B_3 e^{-ik_3(a+b)} = A_4 e^{ik_4(a+b)} + B_4 e^{-ik_4(a+b)} \quad (6.21)$$

$$A_4 e^{ik_4(a+b+c)} + B_4 e^{-ik_4(a+b+c)} = e^{i\mathbf{K}(a+2b+c)}(A_1 e^{-ik_1 b} + B_1 e^{ik_1 b}) \quad (6.22)$$

$$C_1 k_1 (A_1 - B_1) = C_2 k_2 (A_2 - B_2) \quad (6.23)$$

$$C_2 k_2 (A_2 e^{ik_2 a} - B_2 e^{-ik_2 a}) = C_3 k_3 (A_3 e^{ik_3 a} - B_3 e^{-ik_3 a}) \quad (6.24)$$

$$C_3 k_3 (A_3 e^{ik_2(a+b)} - B_3 e^{-ik_2(a+b)}) = C_4 k_4 (A_4 e^{ik_4(a+b)} - B_4 e^{-ik_4(a+b)}) \quad (6.25)$$

$$C_4 k_4 (A_4 e^{ik_4(a+b+c)} - B_4 e^{-ik_4(a+b+c)}) = C_1 k_1 e^{i\mathbf{K}(a+2b+c)}(A_1 e^{-ik_1 b} - B_1 e^{ik_1 b}) \quad (6.26)$$

Se tiene entonces un sistema homogéneo de ocho ecuaciones con ocho incógnitas. Para que el sistema tenga una solución no trivial su determinante debe ser cero. De esta manera se obtiene una relación de dispersión $\omega(\mathbf{K})$. En general, una estructura periódica cuya celda unidad está formada por N capas, estará descrita por un sistema de $2N$ ecuaciones.

A continuación se considerará una superred donde cada celda unidad está formada por un espejo de 1.5 períodos de AlAs/GaAs de (2.35 nm/5.93 nm) de espesor, y una cavidad

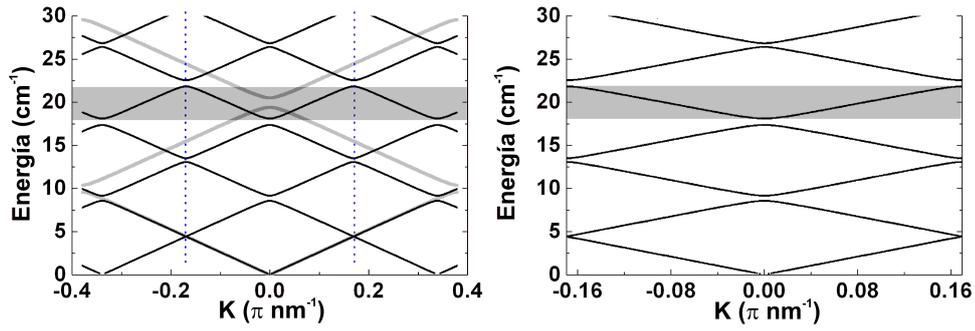


Figura 6.11: Esquema de bandas en la primera zona de Brillouin de una superred de GaAs/AlAs de 5.93/2.35 nm (gris) junto al esquema de bandas de la superred de cavidades acopladas descrita en el texto (izquierda). Detalle del esquema de bandas en la primera zona de Brillouin de la superred de cavidades acopladas (derecha). En ambos casos la región sombreada indica la minibanda principal.

de GaAs de 7.90 nm que corresponde a la longitud de onda de un fonón de 20 cm^{-1} . La Fig. 6.11 (izquierda) muestra un esquema de bandas de dicha estructura y de una superred de AlAs/GaAs de 2.35 nm/5.93 nm (en gris) dentro de la primera minizona de Brillouin de esta última. Para la superred, se puede observar el minigap de centro de zona en 20 cm^{-1} , y los de borde de zona en 10 cm^{-1} y 30 cm^{-1} . Con líneas punteadas se indican los bordes de la primera zona de Brillouin de la superred de cavidades. En el panel de la derecha de la misma figura se tiene un detalle de la primera zona de Brillouin del arreglo periódico de cavidades para el mismo rango de energías. Como resultado del acoplamiento entre los modos de las cavidades individuales, se forma una minibanda en el centro del stop-band de la superred. Este es el caso de la minibanda que se extiende entre 18.1 y 21.8 cm^{-1} (zona sombreada). Puede distinguirse que los minigaps tienen anchos distintos. En particular, los minigaps que delimitan la minibanda principal son idénticos entre sí, y diferentes al resto.

Las soluciones estacionarias y la reflectividad acústica se obtienen mediante el método de matrices de transferencia discutido en el Cap. 2. Con éste mismo método es posible obtener un diagrama en el que se indique si una energía pertenece a una banda permitida (minibanda) o a una prohibida (minigap).

Sea A la matriz de transferencia a través de un período de la estructura:

$$A_{est} = \begin{pmatrix} a_{11} & a_{12} \\ a_{21} & a_{22} \end{pmatrix}. \quad (6.27)$$

Esta matriz relaciona las soluciones al inicio y al final del período según:

$$\begin{pmatrix} \phi_0^+ \\ \phi_0^- \end{pmatrix} = A_{est} \begin{pmatrix} \phi_N^+ \\ \phi_N^- \end{pmatrix}. \quad (6.28)$$

Por otro lado, dado que se está analizando un arreglo periódico, es posible aplicar el teorema de Bloch, de modo tal que:

$$\begin{pmatrix} \phi_0^+ \\ \phi_0^- \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} e^{-iKd} & 0 \\ 0 & e^{iKd} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \phi_N^+ \\ \phi_N^- \end{pmatrix}. \quad (6.29)$$

Teniendo en cuenta 6.28 y 6.29, es posible obtener la siguiente expresión:

$$e^{-iKd} + e^{iKd} = a_{11} + a_{22}. \quad (6.30)$$

Calculando el módulo a ambos lados y despejando resulta:

$$|\cos(Kd)| = \frac{|a_{11} + a_{22}|}{2}, \quad (6.31)$$

que permite establecer la condición para que una energía sea permitida:

$$\frac{|a_{11} + a_{22}|}{2} \leq 1. \quad (6.32)$$

Por lo tanto, dada una energía, basta con calcular la matriz de transferencia a lo largo de un período de la estructura para establecer si se trata de una energía permitida (prohibida) perteneciente a una minibanda (minigap).

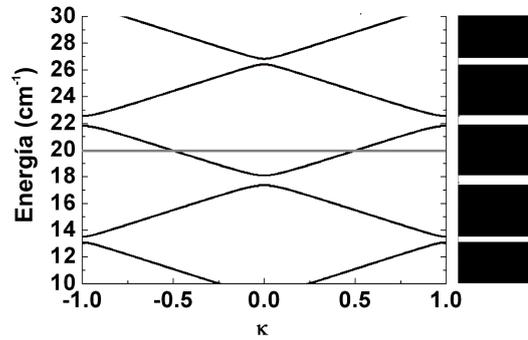


Figura 6.12: Diagrama de energías permitidas y prohibidas para una superred de cavidades acopladas. Regiones negras (blancas) representan minibandas (minigaps). A fines comparativos se incluye a la izquierda el diagrama de energías permitidas en función del vector de ondas reducido para la misma estructura. En gris se indica la energía de los modos de cavidad aislados que dan lugar a la minibanda.

En la Fig. 6.12 (derecha) se muestra el esquema de bandas de la estructura estudiada para energías entre 10 cm^{-1} y 30 cm^{-1} . Para mayor claridad se indica con una línea gris la energía de los modos de las cavidades desacopladas. Se distinguen cuatro regiones blancas, que corresponden a los minigaps, y cinco regiones negras correspondientes a minibandas. Se puede notar que el ancho energético de los minigaps centrados en 17.9 y 22.2 cm^{-1} es mayor que el de los que se encuentran en 26.5 y 13.25 cm^{-1} . A fines comparativos se muestra un detalle de las energías permitidas en función del vector de onda reducido κ , para el mismo rango de energías. Nótese la equivalencia entre ambas formas de representar energías permitidas.

La relación de dispersión del sistema permitirá deducir entre otras propiedades, la velocidad efectiva de propagación de un paquete de ondas dentro de una estructura periódica [41]. Por otro lado, el diagrama de energías permitidas es más sencillo de calcular, y la simplicidad de su representación lo convierte en la herramienta adecuada para el estudio de las oscilaciones de Bloch de fonones acústicos y de potenciales no-lineales a desarrollarse en las próximas secciones.

El espesor de la cavidad en la celda unidad determina la posición en donde se forman las distintas minibandas. En particular, en el caso estudiado, la energía de la cavidad de la celda unidad coincide con el centro de una minibanda. En la Fig. 6.13 se grafica el esquema de bandas permitido en el rango de energías $10\text{-}30\text{ cm}^{-1}$ para estructuras con espejos de 1.5 a 8.5 períodos. En todos los casos las estructuras son idénticas salvo por el número de períodos que forman los espejos de la celda unidad. Puede verse que a mayor número de períodos, menor es el acoplamiento entre las cavidades, resultando en minibandas más angostas.

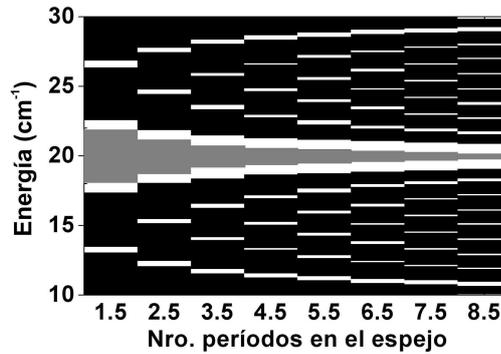


Figura 6.13: Esquema de energías permitidas para energías desde 10 cm^{-1} hasta 30 cm^{-1} , en función del número de períodos que forman el espejo de la celda unidad. Con gris se indican las minibandas principales.

Se puede observar que en todos los casos existe una minibanda centrada en 20 cm^{-1} formada por el acoplamiento de los modos de las cavidades (indicada en gris). El ancho de esta banda disminuye al aumentar el número de períodos que forman los espejos que separan cada cavidad. Este ancho varía de $\sim 4\text{ cm}^{-1}$ para el arreglo con espejos de 1.5 períodos a menos de 1 cm^{-1} para el de 8.5 períodos. Equivalentemente, la *masa efectiva* de las excitaciones extendidas aumentará al incrementar el número de períodos y disminuir el acoplamiento entre cavidades. Se denominará minibanda principal a aquella que se forma por el acoplamiento de los modos de cavidad, y que se centra en el stop-band del espejo que forma la celda unidad. Del mismo modo, el número de minigaps que aparecen entre dos minibandas principales es igual al número de capas de AIAs presentes en cada espejo. En este caso las minibandas principales se ubican en 10.0 , 20.0 y 30.0 cm^{-1} .

En la siguiente sección se estudiará cómo es posible introducir un potencial fonónico lineal para formar los niveles de Wannier-Stark en el dominio espectral, y las oscilaciones de Bloch acústicas en el dominio temporal.

6.2.2. Oscilaciones de Bloch y niveles de Wannier-Stark fonónicos

Las oscilaciones de Bloch (OB) electrónicas, es decir las oscilaciones de electrones producidas por un campo eléctrico constante en presencia de un potencial periódico [159, 160], son un fenómeno difícil de estudiar experimentalmente, y forman uno de los ejemplos más claros de efectos cuánticos en sólidos. El teorema de aceleración,

$$\hbar\dot{\mathbf{k}} = eF \quad (6.33)$$

establece que el cuasimomento de un estado de Bloch varía en el tiempo en forma proporcional al campo eléctrico aplicado [159]. Como consecuencia, el electrón es reflejado al alcanzar el borde de la primera zona de Brillouin, cambiando el signo de su cuasimomento; por lo que se induce un movimiento oscilatorio en el espacio real conocido como oscilaciones de Bloch. El período de estas oscilaciones está dado por [159],

$$\tau_b = \frac{h}{eFd} \quad (6.34)$$

donde d es el espesor de la celda unidad y F el campo eléctrico aplicado. Este problema también puede ser analizado en el dominio espectral en donde los estados de Wannier-Stark (WS) son el equivalente a las OB en el dominio temporal [161]. La presencia de un campo eléctrico produce una localización de las funciones de onda. El espectro continuo de una banda se reemplaza por una serie de estados equiespaciados energéticamente denominada escalera de Wannier-Stark o WSL³ [161],

$$E_\nu = E_0 + \nu eFd, \quad \nu = 0, \pm 1, \pm 2, \dots \quad (6.35)$$

donde E_0 es la energía de un sitio atómico aislado, F el campo eléctrico aplicado y d el ancho de la celda unidad.

La condición de existencia de las OB es que el tiempo de coherencia de un electrón sea mayor que el período de una oscilación. La observación experimental de las oscilaciones de Bloch electrónicas hasta el momento ha resultado imposible en materiales *bulk*, debido a que los distintos mecanismos de relajación no permiten una aceleración de los electrones hasta el borde de la zona de Brillouin [162].

En 1992, Feldmann *et al.* [163] observaron por primera vez las OB en una superred de materiales semiconductores. El tamaño de la supercelda determina una primera zona de Brillouin reducida y de esta manera el tiempo de coherencia necesario para observar el fenómeno también resulta menor que en *bulk*.

La ecuación de ondas a la que responden los fotones propagándose en un medio dieléctrico es semejante a la ecuación de Schrödinger, y como consecuencia es posible prever la

³del inglés Wannier-Stark ladder, referencia al conjunto de estados de Wannier-Stark.

existencia de oscilaciones de Bloch y WSL de fotones. En 2004 se observaron experimentalmente oscilaciones de Bloch de fotones en estructuras basadas en microcavidades ópticas [38, 39]. Las cavidades ópticas generan estados fotónicos discretos que pueden acoplarse a través de los espejos que las separan. Introduciendo un gradiente en las energías de las cavidades es posible *torcer* las bandas fotónicas y de esta manera simular el efecto de un campo eléctrico en una SL. La energía de las distintas cavidades puede sintonizarse cambiando el camino óptico, ya sea a través del índice de refracción o del espesor de las mismas. Los mecanismos de relajación para fotones son menos efectivos que los electrónicos, facilitando la observación de las OB. Por otro lado, los estudios previos fueron realizados en la región visible del espectro electromagnético, donde existen los elementos de óptica necesarios y las estructuras resultan del orden de varios micrones, accesibles por diversas técnicas de crecimiento. Sin embargo, el estudio de las oscilaciones de Bloch fotónicas se realizó en el dominio espectral, dado que el dominio temporal resulta altamente complejo debido a las frecuencias involucradas.

A continuación se estudiará el fenómeno de las oscilaciones de Bloch para fonones acústicos en superestructuras basadas en nanocavidades de materiales semiconductores. Asimismo se proponen experimentos en el dominio temporal y en el dominio espectral que permiten poner en evidencia estos fenómenos. Como $\lambda_{\text{acústico}} \ll \lambda_{\text{óptico}}$, en nanofonónica de THz uno de los principales desafíos es el crecimiento de las muestras. Las estructuras estudiadas en este capítulo pueden ser crecidas perfectamente utilizando técnicas epitaxiales.

El sonido responde a una ecuación de ondas similar a la de los fotones, en donde los parámetros relevantes son la velocidad del sonido, y la densidad de los distintos medios involucrados, por lo que es posible prever la existencia de WSL y OB para fonones acústicos [40]. Tomando como referencia las estructuras estudiadas en la sección anterior, en donde un conjunto de cavidades acopladas forma una minibanda (equivalente a las minibandas electrónicas de conducción en superredes), y variando la energía de los modos en forma lineal con la posición, es posible *torcer* dicha minibanda. De esta manera el efecto es semejante al que se produce en un sólido cuando se aplica un campo eléctrico constante. Una forma de verlo consiste en analizar lo que sucede con las reflexiones de Bragg a medida que un electrón o fonón se desplaza por la estructura. En el caso electrónico, el electrón se acelera en el espacio real, y su longitud de onda disminuye, continuando de esta manera hasta que entra en condición de reflexión de Bragg con los planos de átomos. Contrariamente a lo que ocurre con los electrones, los fonones no pueden cambiar su energía en forma continua debido a un campo externo. En este caso se modificará el espaciamiento de los planos, y de esta manera el fonón se propagará por la estructura hasta que los planos que esté atravesando cumplan con la condición de Bragg.

Para poder observar las oscilaciones de Bloch, la energía de la n -ésima cavidad debe diferir de la $(n - 1)$ -ésima cavidad en un valor constante. Esa dependencia lineal con la posición de la energía del modo de cavidad, análogo a un campo eléctrico para los electrones, puede ser obtenida sintonizando los espesores de las cavidades. Se considera una estructura formada por una multicapa donde cada celda unidad consiste en un BR que consta de 2.5 períodos de GaAs/AlAs ($3\lambda/4, \lambda/4$), y una cavidad λ de GaAs. Esta celda

unidad se repite N_c veces, con los espesores incrementándose desde la superficie hacia el sustrato, con el propósito de obtener una variación en las frecuencias de los modos de cavidad de $\Delta = -0.15 \text{ cm}^{-1}$. El panel de la izquierda de la Fig. 6.14 muestra el diagrama de bandas de energías permitidas, similar a los discutidos para minibandas acústicas. Las minibandas se encuentran inclinadas, reflejando el potencial efectivo introducido. La minibanda originada por los estados confinados en las nanocavidades se señala sombreada en gris. Esta minibanda está limitada por regiones prohibidas a frecuencias más altas y más bajas. Estas regiones, indicadas con negro en la Fig. 6.14, se denominarán minigaps de alta y baja frecuencia, respectivamente. El propósito de este tipo de esquemas, propuesto originalmente en el contexto de las estructuras fotónicas y luego extendido a las nanoestructuras acústicas [41], es enfatizar la dependencia espacial de los modos, que varían linealmente en este caso, y estimar las energías permitidas. Sin embargo, debe notarse que para cada número de cavidad, el diagrama representa el esquema de minibandas y minigaps para una estructura obtenida repitiendo una serie infinita de cavidades idénticas a la que existe en esa posición. Los diagramas de energías permitidas resultan un esquema útil, pero no representan los estados verdaderos de la estructura espacialmente modulada.

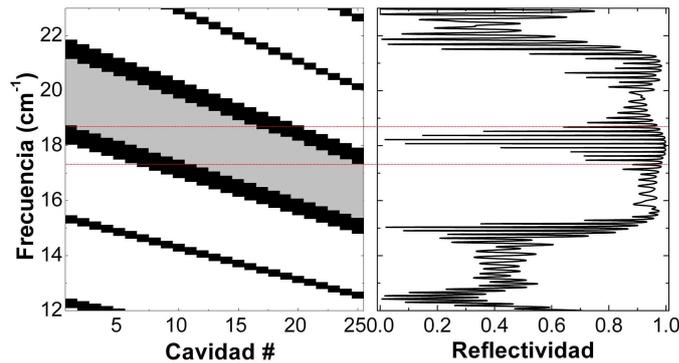


Figura 6.14: Estructura de bandas de los fonones acústicos en el resonador de Bloch (izquierda). La región gris corresponde a la minibanda principal. Las zonas negras indican minigaps. Reflectividad acústica de la estructura (derecha). Las líneas punteadas rojas delimitan la banda de los estados de WS.

Los modos propios acústicos de la estructura son determinados por el potencial efectivo definido durante el diseño de la muestra. Las Figs. 6.14 y 6.15 presentan dos maneras equivalentes de obtener los modos acústicos generados por el potencial efectivo. Los autoestados pueden derivarse de la curva de reflectividad acústica (Fig. 6.14), o evaluando la distribución de desplazamiento fonónico como función de la posición y la energía (Fig. 6.15). En este último caso, los fonones fueron calculados suponiendo una incidencia desde la izquierda. La reflectividad se caracteriza por una banda espectral ancha de alta reflectividad, determinada por los minigaps de baja y alta frecuencia. Dentro de esta región de alta reflectividad se pueden observar una serie de dips equidistantes. Estos dips están bien definidos y separados exactamente por Δ en la región espectral donde los fonones son confinados entre los dos minigaps (región limitada con líneas punteadas rojas en la Fig. 6.14). Los dips de reflectividad definen los modos propios de la banda de cavidades

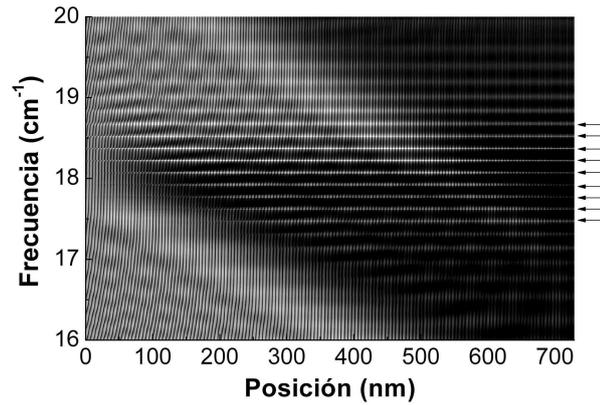


Figura 6.15: Desplazamiento acústico como función de la posición y la energía. Las regiones más claras representan campos más intensos. Con flechas se indican las energías correspondientes a la WSL

acústicas en la presencia de un potencial lineal efectivo, y son equivalentes a los estados de Wannier-Stark estudiados en electrónica. Fuera de esta región, los dips en la reflectividad están influenciados por las condiciones de contorno y pérdidas en la primera y en la última cavidad de la estructura. Cuando se acopla a uno de los modos de Wannier-Stark acústicos, el hipersonido puede atravesar la estructura de múltiples cavidades por efecto túnel. Esto determina la distribución del desplazamiento acústico mostrado en la Fig. 6.15, donde las regiones brillantes, indicadas con flechas, corresponden a los niveles de Wannier-Stark fonónicos. Las regiones inclinadas claras están relacionadas con los minigaps, donde el hipersonido es reflejado. Los estados bien definidos de Wannier-Stark son la contraparte en el dominio espectral de las oscilaciones de Bloch. Precisamente es en esta banda de frecuencias que las oscilaciones están definidas en el dominio temporal. La evolución temporal de un paquete de ondas incidiendo sobre la estructura presentada en las Figs. 6.14 y 6.15 se muestra en la Fig. 6.16. Para estas simulaciones se utilizó un pulso gaussiano con $2\sigma = 1.0 \text{ cm}^{-1}$, y una energía central de 18.3 cm^{-1} . La línea vertical roja indica el límite entre la estructura de cavidades y un medio de GaAs. Es evidente que una vez en la estructura, el pulso desarrolla claramente una serie de oscilaciones periódicas. La evolución temporal mostrada corresponde a las oscilaciones de Bloch de fonones acústicos originadas por la presencia de un potencial periódico más un potencial lineal. El período temporal, y la longitud espacial de la oscilación descrita por el pulso están directamente determinados por Δ ($\tau_B = \hbar/\Delta$).

Los estados de Wannier-Stark definidos por los dips en la reflectividad, y las zonas de mayor intensidad en la distribución de campo fonónico, constituyen un ejemplo de ingeniería del espectro de fonones acústicos. Los autoestados de la estructura de bandas acústicas inclinadas están separados por Δ , coincidiendo con la separación energética de los modos confinados en dos cavidades consecutivas. Sin embargo, debe notarse que las energías de los autoestados no coinciden con las energías de los modos de las cavidades originalmente desacopladas. Los autoestados corresponden a modos de la estructura compleja completa.

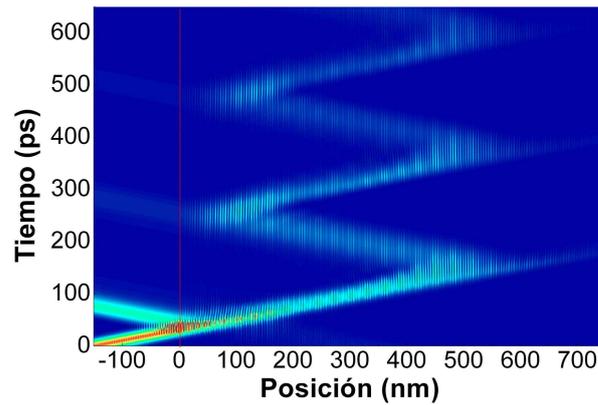


Figura 6.16: Evolución temporal de un paquete de ondas gaussiano de $2\sigma=1.0 \text{ cm}^{-1}$, centrado en 18.3 cm^{-1} , incidiendo sobre la cara izquierda de un resonador de Bloch. La estructura está formada por 25 cavidades acopladas con un gradiente de energías de -0.15 cm^{-1} por celda unidad.

6.2.3. Manipulación del campo eléctrico y dispersión Raman

Al igual que en el caso de la molécula fonónica, se estudiará teóricamente la dispersión Raman en una estructura formada por cavidades acústicas acopladas, con un potencial fonónico efectivo lineal. Con el fin de aumentar la sección eficaz de dispersión Raman, y poder excitar de manera espacialmente selectiva partes de la muestra, se inserta el resonador en una microcavidad óptica. En la Fig. 6.17 se esquematiza la muestra estudiada. En esta figura pueden distinguirse los espejos ópticos encerrando una estructura formada por cavidades acopladas, cada una con espesores diferentes a fin de simular la presencia de un potencial lineal.

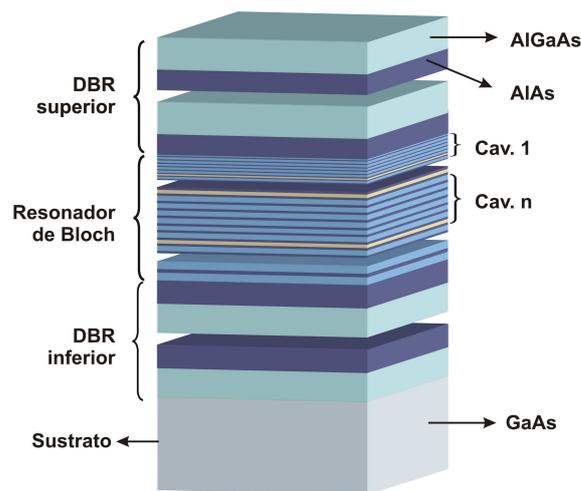


Figura 6.17: Esquema de la estructura estudiada por dispersión Raman formada por un resonador fonónico de Bloch dentro de una microcavidad óptica.

El espaciador óptico de la microcavidad consiste en un resonador de Bloch formado por 15 cavidades acústicas acopladas, con un gradiente en las frecuencias de 0.36 cm^{-1}

por cavidad. Esta separación en las frecuencias de las cavidades desacopladas (idéntica a la separación entre los estados de WS) es suficientemente grande como para que sea posible resolver los modos en experimentos de dispersión Raman de alta resolución. Cada celda unidad de la estructura acústica está formada por un espejo acústico de 6.5 períodos de AlAs/GaAs ($\lambda/4, 3\lambda/4$) y un espaciador $\lambda/2$. En la Fig. 6.18 se puede observar el diagrama de bandas del resonador de Bloch. La banda formada por el acoplamiento de las cavidades junto con el potencial fonónico efectivo se encuentra sombreada en gris. La región frecuencial en la que se definen los niveles de Wannier-Stark (de aproximadamente 4 cm^{-1}) está limitada por dos líneas rojas horizontales. El valor de la diferencia de frecuencias Δ entre dos cavidades consecutivas, no sólo determina el período de las oscilaciones de Bloch, sino también el nivel de localización espacial de los estados de Wannier-Stark fonónicos: cuando mayor es Δ , más localizados estarán los estados. A mayor separación de energía entre modos (Δ), la distribución de desplazamiento acústico de un estado de Wannier-Stark estará mayormente concentrada en una única cavidad. Por el contrario, si Δ es pequeño, los estados de Wannier-Stark estarán distribuidos espacialmente a lo largo de un gran número de cavidades acústicas.

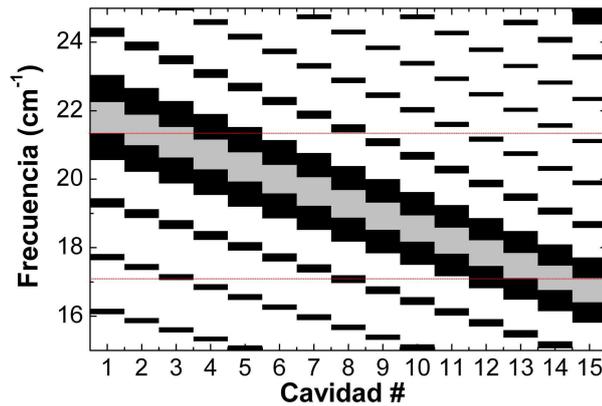


Figura 6.18: Estructura de bandas de los fonones acústicos en el resonador de Bloch. Las líneas punteadas rojas delimitan la región de la WSL.

El resonador de Bloch forma un espaciador óptico de espesor 4λ para la cavidad óptica. El espejo superior (inferior) de la cavidad óptica está formado por 10 (14) períodos de AlAs/ $\text{Al}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{As}$ (71.90/62.06 nm). La diferencia en el número de períodos sirve para compensar la diferencia entre los coeficientes de reflexión aire/muestra y muestra/sustrato. En el panel izquierdo de la Fig. 6.19 puede observarse la reflectividad óptica simulada de esta estructura. Se puede distinguir claramente la presencia del modo óptico de cavidad a 851.5 nm. En el panel de la derecha de la Fig. 6.19 se muestra la intensidad del campo electromagnético en función de la posición dentro de la estructura para la energía correspondiente al modo óptico confinado. Para facilitar la localización de las diferentes partes de la estructura, se incluye el perfil de índices de refracción. El campo eléctrico presenta 8 máximos en la región del espaciador óptico (debe recordarse que es una cavidad de espesor 4λ). La existencia de estos 8 máximos (y de sus 7 mínimos asociados) implica que toda la estructura acústica no será excitada de manera uniforme.

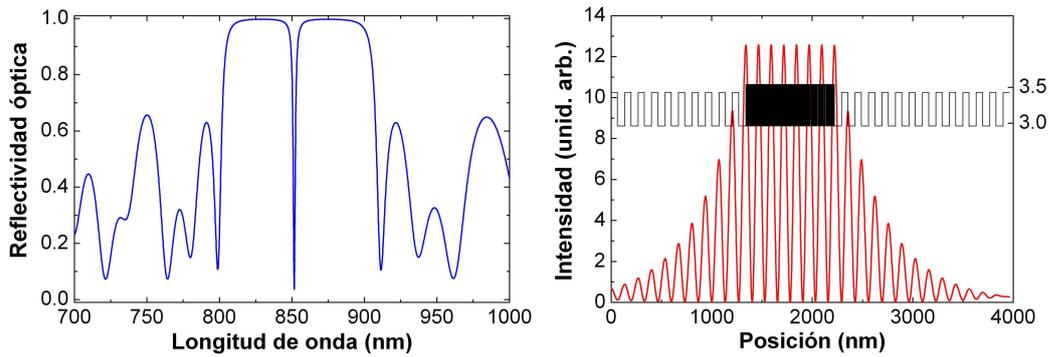


Figura 6.19: Izquierda: reflectividad óptica calculada de la microcavidad óptica con un espaciador formado por un resonador de Bloch. Derecha: intensidad del campo electromagnético en función de la posición para la longitud de onda correspondiente al modo confinado. Se incluye el perfil de índices de refracción para facilitar la localización de las diferentes partes de la estructura.

En la Fig. 6.20 se muestra un detalle de la distribución de la intensidad del campo eléctrico en la región del espaciador óptico. Los círculos indican la posición de los espaciadores acústicos de las nanocavidades que forman el resonador de Bloch, que a su vez constituye el espaciador de la microcavidad óptica. Tanto el número de períodos en el espejo acústico de cada celda unidad, como la energía de la primera cavidad y el gradiente Δ fueron elegidos de manera tal que aproximadamente una de cada dos cavidades acústicas se localice en un máximo del campo eléctrico confinado. Se puede observar que esto se cumple particularmente bien en las últimas 10 nanocavidades de la estructura.

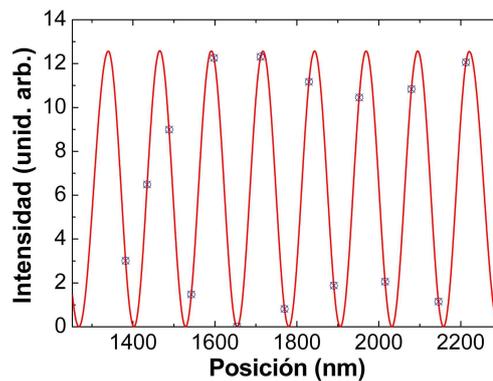


Figura 6.20: Detalle de la intensidad del campo electromagnético en función de la posición para la longitud de onda correspondiente al modo confinado en la región del espaciador óptico. Los círculos indican la posición de los espaciadores acústicos de las cavidades que forman el resonador de Bloch inmerso en la cavidad óptica.

La reflectividad acústica calculada del resonador de Bloch se muestra en gris en la Fig. 6.21. Los círculos con cruces indican las posiciones frecuenciales de las cavidades acústicas desacopladas. En la región de la WSL los modos de alta transmisión no coinciden con las energías de las cavidades individuales, sino que corresponden a modos colectivos

y sus frecuencias se encuentran entre las frecuencias de dos cavidades consecutivas. Como en el caso estudiado en la sección anterior, se observa una banda de alta reflectividad que se asocia a la reflectividad de los dos minigaps inclinados y superpuestos. La curva naranja en la Fig. 6.21 corresponde al espectro Raman calculado en la microcavidad óptica considerando que la excitación se realiza en resonancia con el modo óptico. Entre 17.0 y 22.0 cm^{-1} se observan una serie de picos bien definidos, mientras que a ambos lados de estas energías se ven oscilaciones. En el conjunto de modos se pueden distinguir claramente 5 picos a 18.03, 18.76, 19.48, 20.20 y 20.92 cm^{-1} que coinciden perfectamente con estados de alta transmisión, asociados a los estados de Wannier-Stark acústicos. No sólo coinciden en las posiciones espectrales con los estados de Wannier-Stark (WS), sino que sólo uno de cada dos picos resulta Raman activo en esta configuración.

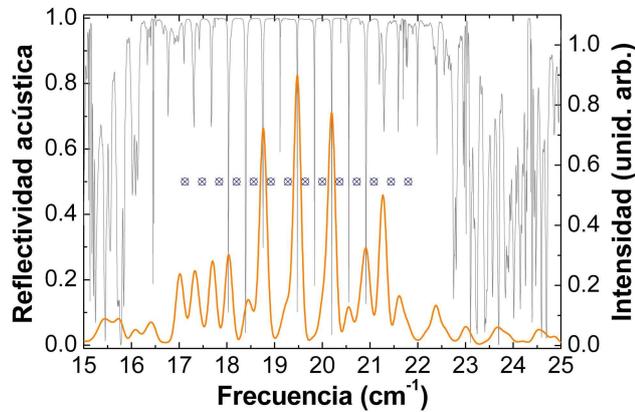


Figura 6.21: Reflectividad acústica calculada (gris) del resonador de Bloch, y espectro Raman considerando que la excitación se realiza en resonancia con el modo de la microcavidad óptica (naranja).

Teniendo en cuenta el gradiente de energías $\Delta=0.36 \text{ cm}^{-1}$, es posible ver que los modos de la WSL están muy localizados espacialmente; y la excitación de una cavidad acústica dentro de la estructura se ve reflejada en un modo activo en el espectro Raman. De esta manera, cambiando la posición de los máximos del campo eléctrico respecto a los espaciadores de la nanocavidades que forman el resonador de Bloch, deberían cambiar las intensidades relativas de los picos, y en principio debería ser posible volver activos los picos inactivos y viceversa. En otras palabras, realizando un diseño del campo eléctrico dentro la estructura de cavidades acopladas, debería ser posible evidenciar la existencia de todos los modos de la WSL.

Existen diversas formas de modificar la posición relativa de las nanocavidades acústicas respecto a los máximos del campo eléctrico, por ejemplo, disminuyendo el número de cavidades acopladas, agregando un espaciador de AlGaAs, o períodos acústicos adicionales para cambiar el ancho del espaciador óptico, o modificar los espesores de las capas de los espejos ópticos junto con el ancho total de la muestra acústica para cambiar la longitud de onda óptica resonante.

Con el fin de ilustrar como cambia el espectro Raman con la sintonización de los

máximos del campo eléctrico, se diseñó una segunda muestra, en donde se agrega una cavidad acústica adicional (al principio de la estructura), y un espejo acústico al final de la misma, de manera tal de lograr una nueva cavidad óptica 4λ pero para una longitud de onda levemente más grande. En este caso, la ubicación de las cavidades respecto a los máximos de intensidad del campo eléctrico está invertida respecto a la estructura estudiada anteriormente.

En la Fig. 6.22 se muestran la reflectividad (gris), y el espectro Raman (naranja) calculado en la nueva estructura en condición de resonancia óptica. En la banda frecuencial entre 17.0 y 22.0 cm^{-1} se puede distinguir una serie de picos bien definidos, y oscilaciones fuera de esta banda. Los picos ubicados a $17.68, 18.39, 19.12, 19.83$ y 20.55 cm^{-1} coinciden perfectamente con modos de transmisión asociados a los niveles de WS. En particular, estos picos Raman activos corresponden a los modos inactivos en la otra muestra (comparar con el espectro de línea punteada en la misma figura). En el caso del pico a 19.83 cm^{-1} es notable como pasa de ser inactivo en una estructura a ser el pico más intenso en la otra, donde la única diferencia fundamental entre las dos muestras es la fase relativa del campo eléctrico con la superestructura acústica.

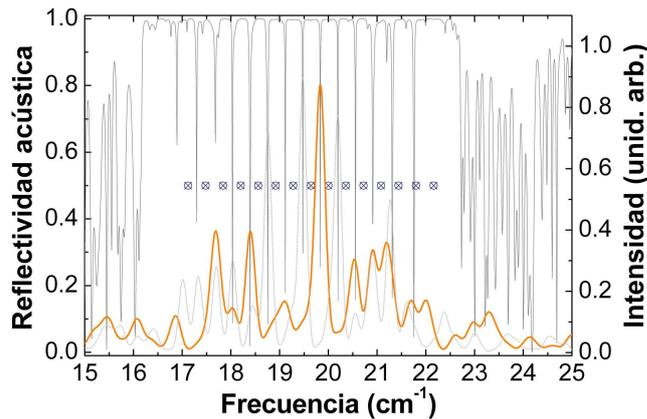


Figura 6.22: Reflectividad acústica calculada (gris) del resonador de Bloch, y espectro Raman considerando que la excitación se realiza en resonancia con el modo de la microcavidad óptica (naranja). Con línea punteada se incluye el espectro Raman de la Fig. 6.21

Comparando las Figs. 6.21 y 6.22, se ve que es posible estudiar completamente los modos propios de un resonador de Bloch en el dominio espectral, cambiando las condiciones de contorno electromagnéticas. Extendiendo el concepto a otro tipo de estructuras, es posible prever la posibilidad de realizar experimentos de dispersión Raman excitando selectivamente una región espacial de la muestra, sin necesidad de recurrir a resonancias electrónicas (a diferencia de lo estudiado en el Cap. 5). En el próximo apartado se estudiará un resonador fonónico de Bloch en el dominio temporal mediante experimentos de generación coherente de fonones acústicos.

6.2.4. Estudio experimental de las oscilaciones de Bloch de hipersonido

Las oscilaciones de Bloch son la contraparte temporal de los niveles de Wannier-Stark estudiados en la sección anterior mediante la simulación de experimentos de dispersión Raman. En este apartado se presentan los resultados del estudio de las oscilaciones de Bloch fonónicas en el rango de los THz mediante experimentos de generación coherente de fonones acústicos. La muestra estudiada es idéntica a la correspondiente a la estructura de bandas mostrada en la Fig. 6.18. La estructura de 15 nanocavidades acústicas acopladas se creció sobre un sustrato de GaAs orientado en la dirección (001). Es importante remarcar que esta muestra no incluye espejos ópticos en su estructura.

Para el estudio de las oscilaciones de Bloch de hipersonido, se realizaron experimentos de generación coherente de fonones acústicos, a temperatura ambiente, y en geometría de reflexión. En esta configuración, tanto la generación como la detección de los fonones acústicos se realizó directamente sobre la estructura de nanocavidades acopladas. A causa de los efectos de confinamiento electrónico, y del gradiente en espesores, los gaps correspondientes a los BRs a temperatura ambiente se localizan entre 810 y 830 nm, mientras que los espaciadores de las nanocavidades presentan sus transiciones electrónicas entre 760 y 790 nm. Los experimentos fueron realizados con una longitud de onda del láser $\lambda = 815$ nm, por lo que los espejos fonónicos que forman las cavidades acústicas se excitaron en forma resonante. Se utilizó una potencia de 54.6 mW (10.0 mW) para el pump (probe).

En la Fig. 6.23a se muestra en azul la señal de reflectividad resuelta en tiempo medida en la configuración de reflectometría. La variación inicial rápida se debe a la respuesta electrónica del sistema. La curva roja corresponde al ajuste de la señal con un polinomio de grado 9. Este ajuste se utiliza como aproximación del fondo casi continuo de la curva experimental. En el cuadro interior se muestra un detalle de la señal en el intervalo entre 200 y 300 ps, donde pueden observarse cuatro oscilaciones de baja frecuencia correspondientes al modo Brillouin. Asimismo, pueden distinguirse oscilaciones de alta frecuencia de menor intensidad. En la Fig. 6.23b se muestra la misma señal experimental luego de haberle restado el fondo casi continuo. En este caso, se vuelve evidente la presencia de las oscilaciones Brillouin. La oscilación de baja frecuencia (con un período de ~ 300 ps) es un efecto introducido por el ajuste polinómico, y no corresponde a una característica propia de la respuesta del sistema. En el cuadro interior se muestra un detalle de la señal entre 200 y 300 ps, donde además de las oscilaciones Brillouin se pueden distinguir claramente oscilaciones de alta frecuencia.

En el panel superior de la Fig. 6.24 se muestra la reflectividad acústica calculada utilizando los espesores nominales de la estructura. Entre 17.5 y 21.1 cm^{-1} puede observarse una serie de picos, cuyas posiciones corresponden a las energías de los modos de la WSL. En el panel inferior de la misma figura, se muestran en negro la transformada de Fourier (E) de la derivada de la señal temporal mostrada en la Fig. 6.23, en azul la simulación del espectro de generación (G), y en rojo la simulación de la señal detectada en el experimento (D). El espectro experimental presenta entre 17.5 y 21.1 cm^{-1} una serie de picos intensos, equiespaciados, cuyas posiciones coinciden con las energías de la WSL. El cálculo de los espectros de generación y detección se realizó utilizando el modelo fotoelástico descrito en

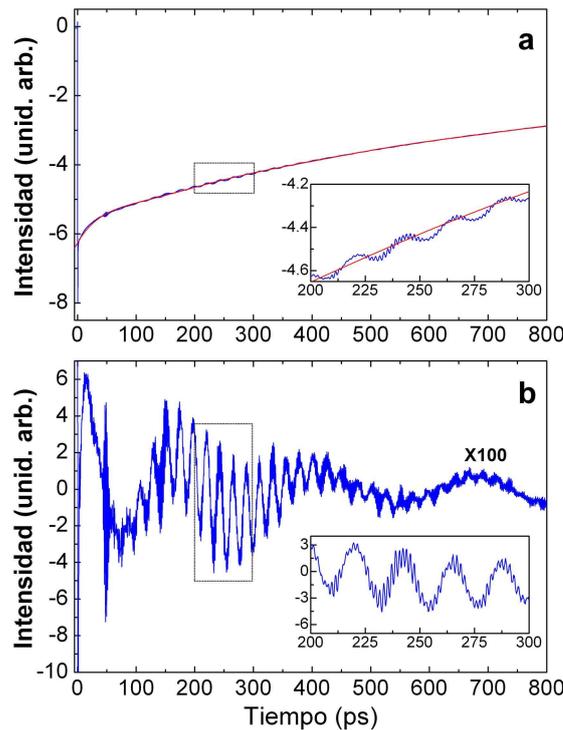


Figura 6.23: Reflectividad resuelta en tiempo medida en la estructura formada por 15 cavidades acústicas acopladas. Panel a: señal medida en configuración de reflectometría, con una longitud de onda del láser $\lambda = 815$ nm (curva azul), y ajuste de la misma con un polinomio de grado 9 (curva roja). Panel b: señal luego de sustraer el ajuste polinómico. La señal ha sido multiplicada por un factor 100 con el fin de obtener intensidades comparables a las mostradas en el panel a. En los cuadros interiores se muestra un detalle de las señales entre 200 y 300 ps.

la Sec. 5.3.1. Para ello se consideró un coeficiente fotoelástico único para todas las capas de GaAs (AlAs) $p = 250.0$ ($p = 28.3$). De esta manera se desprecian los efectos de resonancias electrónicas con los diferentes pozos cuánticos del sistema. Asimismo, se despreciaron los efectos de absorción de la luz, utilizando índices de refracción reales para ambos materiales. Además, en la simulación del espectro detectado se introdujo un ensanchamiento de los picos para tener en cuenta una ventana temporal de medición de 800 ps. El acuerdo entre los datos experimentales y las simulaciones, tanto del espectro de generación como del experimento completo, es excelente. Las simulaciones reproducen todas las posiciones de los principales picos observados. Existen, sin embargo, claras diferencias en sus intensidades relativas. Estas diferencias pueden estar relacionadas con la resonancia del láser con los pozos cuánticos que forman los espejos acústicos de la estructura. Por otro lado, se puede notar que el ancho de los picos experimentales es mayor que el ancho de los picos del espectro D. Esto puede deberse a efectos de absorción acústica, que no fueron tenidos en cuenta en la simulación.

Observando la Fig. 6.24 resulta evidente que las frecuencias correspondientes a los estados de WS pueden ser excitados y detectados directamente por la estructura de cavidades acopladas. Para estudiar las oscilaciones de Bloch fonónicas en el dominio temporal es

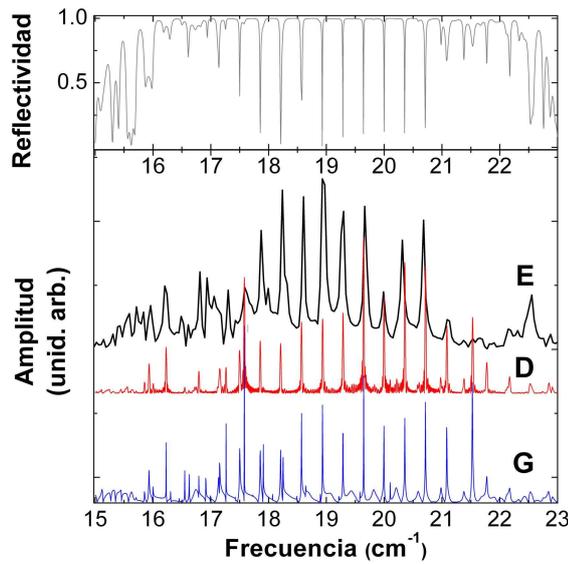


Figura 6.24: Panel superior: reflectividad acústica de un resonador de Bloch. Los mínimos de reflectividad corresponden a estados de WS acústicos. Panel inferior: transformada de Fourier de la derivada de la señal experimental mostrada en la Fig. 6.23 (E), y cálculo de los espectros generado (G) y detectado (D). Las simulaciones fueron realizadas despreciando los efectos de absorción de la luz, y resonancias electrónicas con los pozos cuánticos que forman la estructura. Notar el excelente acuerdo entre el espectro medido y las simulaciones.

posible filtrar las curvas experimentales de reflectividad resuelta en tiempo mostradas en la Fig. 6.23. En la Fig. 6.25a se muestra la señal temporal tratada con un filtro pasabanda definido entre 17.26 y 21.21 cm^{-1} , banda energética que corresponde aproximadamente a la WSL completa. La señal está dominada por oscilaciones de alta frecuencia (correspondientes a la WSL), que pueden apreciarse en el cuadro interior, donde se muestra un detalle de la señal entre 200 y 300 ps. Además, la amplitud de estas oscilaciones se encuentra modulada por una envolvente con máximos cada ~ 95 ps. Cabe mencionar que aplicando un filtro pasa-altos con frecuencia de corte por encima de 3 cm^{-1} , se obtiene una respuesta similar. Esto se debe a que fuera de la banda de energías de los estados de WS, la única contribución importante está dada por el modo Brillouin con una frecuencia de ~ 1.5 cm^{-1} .

En la Fig. 6.25b se muestra la señal experimental (Fig. 6.23) tratada con un filtro pasabanda definido entre 18.48 y 19.50 cm^{-1} . Esta banda de frecuencias comprende sólo tres modos de WS. En este caso resulta evidente la presencia de la envolvente que modula la intensidad de las oscilaciones. La frecuencia de la envolvente está precisamente determinada por el período de las oscilaciones de Bloch, y por lo tanto, por el gradiente de energías con el que fue diseñada la estructura. En el cuadro interior se muestra un detalle de la señal entre 200 y 300 ps, donde pueden apreciarse las oscilaciones de alta frecuencia (~ 19.0 cm^{-1}) cuya amplitud está modulada por una frecuencia de ~ 10.49 GHz ($T=95.3$ ps), que ajusta perfectamente el valor nominal de 10.79 GHz ($T=92.7$ ps).

Para comprender la dinámica temporal de las oscilaciones de Bloch fonónicas dentro de la estructura, se realizó la simulación de la evolución temporal de la deformación acústica

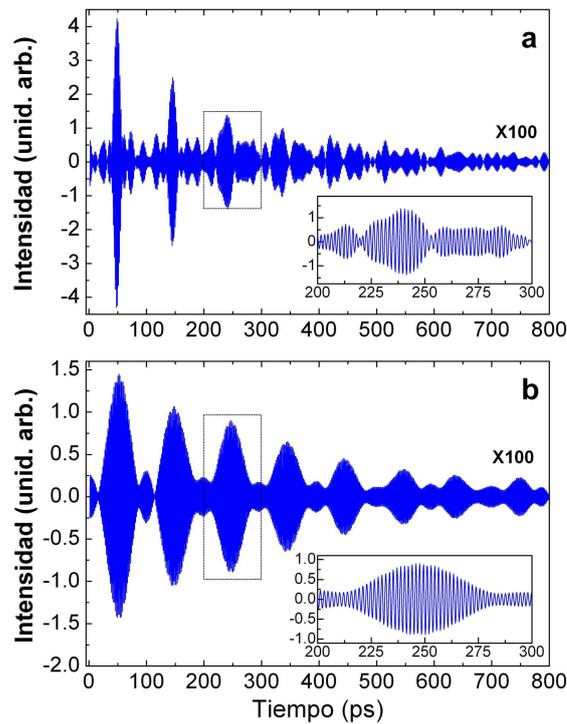


Figura 6.25: Reflectividad resuelta en tiempo medida en la estructura formada por 15 cavidades acústicas acopladas, tratada con un filtro pasabanda definido entre 17.26 y 21.21 cm^{-1} (panel a), y entre 18.48 y 19.50 cm^{-1} (panel b). En los cuadros interiores se muestra un detalle de las señales entre 200 y 300 ps.

en la muestra generada fotoelásticamente por la interacción con un pulso láser ultracorto a $t=0$ ps. Para ello se utilizó el espectro de generación mostrado en la Fig. 6.24. En el panel de la izquierda de la Fig. 6.26 se muestra dicha evolución temporal tomando únicamente las componentes frecuenciales en la banda comprendida entre 18.48 y 19.50 cm^{-1} . Las líneas verticales blancas indican la posición de los espaciadores de las cavidades que forman la superestructura acústica. Puede observarse claramente que existe una oscilación bien definida entre las cavidades 7, 8, y 9. Las señales tenues que se observan entre las cavidades 1 y 7 corresponden a fonones confinados entre la interfaz aire/muestra y los espejos acústicos. En el panel de la derecha de la Fig. 6.26 se puede observar la misma señal mostrada en la Fig. 6.25b. Con líneas horizontales grises se indican las posiciones de los máximos de la envolvente de las oscilaciones de alta frecuencia. Para la banda de frecuencias seleccionada, la señal detectada presenta un máximo cuando el hipersonido se encuentra localizado en la cavidad 7.

La dinámica de los fonones acústicos en el experimento realizado es mucho más compleja, debido a que el espectro generado presenta todas las componentes mostradas en la Fig. 6.24, y no sólo una banda acotada como la simulada en la Fig. 6.26. Cuando el espectro de generación es ancho, el patrón de intensidades de los fonones confinados entre los dos minigaps que delimitan espacialmente las oscilaciones de Bloch, está distribuido en una fracción más grande de la estructura, como puede deducirse del diagrama de ban-

das mostrado en la Fig. 6.18. En este caso, no se puede diferenciar un único paquete y seguir fácilmente su evolución temporal como cuando se analizó la interacción de un pulso gaussiano espectralmente angosto con el resonador de Bloch (Sec. 6.2.2).

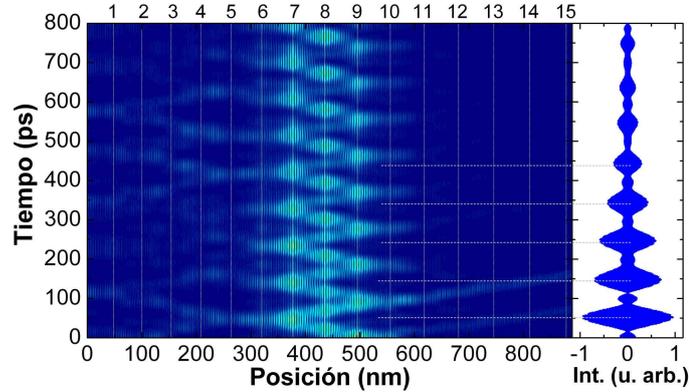


Figura 6.26: Panel izquierdo: Simulación de la evolución temporal del espectro generado entre 18.47 y 19.50 cm^{-1} considerando un mecanismo fotoelástico. Las líneas verticales blancas indican las posiciones de los espaciadores acústicos del resonador de Bloch. Panel derecho: señal experimental tratada con un filtro pasabanda definido entre 18.47 y 19.50 cm^{-1} . Las líneas horizontales grises son una guía para asociar los máximos de la señal detectada con la ubicación del máximo de intensidad de la deformación acústica dentro de la estructura.

En resumen, la dinámica de los fonones acústicos observados corresponde a las oscilaciones de Bloch fonónicas estudiadas teóricamente en la Sec. 6.2.2. Filtrando las curvas experimentales es posible evidenciar estas oscilaciones, y mediante la simulación de la evolución temporal del espectro generado, analizar la dinámica de los fonones acústicos confinados entre los dos minigaps de la estructura. El acuerdo obtenido entre los experimentos y las simulaciones es excelente, aún cuando se utilizaron los mismos valores de la constante fotoelástica para todas las capas de GaAs, no teniendo en cuenta las condiciones de resonancia electrónica del láser con los diferentes pozos cuánticos.

6.3. Conclusiones

En este capítulo se estudiaron los efectos de acoplamiento en sistemas formados por nanocavidades acústicas. En primer lugar se presentaron las dobles cavidades o moléculas fonónicas formadas por nanocavidades idénticas y se analizaron los principales parámetros de diseño. Se demostró cómo es posible controlar las frecuencias de batido características y los tiempos de vida media del hipersonido dentro de estas estructuras. Asimismo se analizó el comportamiento de moléculas fonónicas formadas por cavidades diferenciables. Mediante experimentos de dispersión Raman se demostró por un lado el desdoblamiento de los modos en una molécula fonónica, y por otro la paridad de los mismos, al observarse un modo activo y uno inactivo desplazados respecto de la posición central del minigap.

Aumentando el número de cavidades acústicas acopladas es posible formar una banda fonónica. La reflectividad de los espejos determina las características de la bandas de

transmisión de los nuevos stop-bands determinados por el acoplamiento de las cavidades. Introduciendo un gradiente en las frecuencias características de las cavidades que forman una superestructura es posible replicar el efecto de un potencial. Más aún, dada la versatilidad de los sistemas estudiados es posible simular la presencia de un potencial fonónico prácticamente arbitrario.

La presencia de un potencial periódico lineal, junto con la estructura de bandas fonónicas en sistemas de cavidades acopladas produce el equivalente acústico de las oscilaciones de Bloch en dominio temporal y la definición de los niveles de Wannier-Stark en el dominio frecuencial. Se presentaron estrategias y estructuras capaces de evidenciar estos niveles en experimentos de dispersión Raman con condiciones de confinamiento óptico. Por último, se demostraron experimentalmente las oscilaciones de Bloch fonónicas en el rango GHz-THz, mediante experimentos de generación coherente de fonones acústicos. Asimismo, se demostró la existencia de un conjunto discreto de modos equiespaciados asociados los niveles de WS de la superestructura.

En los experimentos realizados, la generación y la detección de los fonones acústicos coherentes se produce en la misma estructura, excitando todas las cavidades simultáneamente. La dinámica de la respuesta acústica del sistema es compleja, y se requiere el uso de filtros para evidenciar las oscilaciones de Bloch acústicas. La evolución temporal del sistema podría simplificarse excitando selectivamente una nanocavidad, en lugar del conjunto completo de cavidades que forman el resonador de Bloch. Otra alternativa es realizar un experimento de transmisión de fonones acústicos, donde, utilizando un generador optimizado como los discutidos en el Cap 3, podría obtenerse una señal que no requiera el filtrado posterior [40].

Capítulo 7

Conclusiones

En este trabajo de tesis estudiamos nuevos fenómenos físicos en estructuras basadas en multicapas nanométricas capaces de generar, detectar y manipular la propagación de fonones acústicos en el rango de frecuencias GHz-THz. Debido a las frecuencias involucradas, el control de la dinámica de los fonones acústicos tiene implicancias en el control coherente ultra-rápido de carga, luz e hipersonido.

En la primera parte del trabajo abordamos el estudio de sistemas basados en superredes y nanocavidades simples. Realizamos experimentos de transmisión de hipersonido, desacoplando los procesos de generación y detección de fonones acústicos coherentes, y utilizando transductores de banda ancha. Para ello, una película delgada de aluminio actuó como generador de un lado del sustrato, y una segunda película como detector del otro lado. Estudiamos la dinámica de fonones en nanocavidades y demostramos las características de confinamiento en el dominio temporal. Observamos tiempos de transmisión particularmente cortos a través de las estructuras en los minigaps acústicos, motivando el estudio y la demostración del equivalente del efecto Hartman en nanofonónica. Analizamos teóricamente la transmisión de hipersonido a través de superredes periódicas y notamos que, para frecuencias en el minigap y a partir de un determinado número de períodos, el tiempo de transmisión resulta independiente del número de períodos que forman la estructura.

Habiendo estudiado la transmisión a través de dispositivos simples, usando transductores de banda ancha separados por un sustrato, cabe preguntarse sobre el desempeño de las superredes y nanocavidades como generadores y detectores coherentes de fonones acústicos orientados a la monocromaticidad. Para realizar este análisis, combinamos un transductor metálico de banda ancha que actuó como generador (detector), con una superred o nanocavidad que actuó como detector (generador) de hipersonido del otro lado del sustrato. De los resultados obtenidos concluimos que las nanocavidades y superredes pueden ser usadas como detectores de fonones cuasimonocromáticos, permitiendo el estudio de la dinámica de fonones acústicos con frecuencias tan altas como 1.2 THz. Verificamos que la generación se produce en el centro de la zona de Brillouin, con $q = 0$, mientras que la detección se produce con $q = 2k$. Asimismo, un análisis preliminar nos permitió inferir la existencia de una longitud de onda óptica óptima en el proceso de detección que maximiza la sensibilidad del sistema.

El uso de transductores metálicos para la generación de fonones acústicos, junto a los

efectos de propagación no lineal en el sustrato, permite obtener fonones de ultra-altas frecuencias. La generación coherente con un nanodispositivo basado en multicapas tiene como ventaja que la energía de los fonones generados está determinada por la estructura y es por lo tanto factible de ser especificada por diseño. Por otro lado, el proceso de generación se produce en una región espacial determinada por el espesor del dispositivo, contrariamente a lo que sucede en el caso de las películas metálicas en que el proceso de conversión de frecuencias se produce a lo largo de todo el sustrato. En nuestros experimentos usando películas de aluminio como detectores no hemos logrado medir señales con frecuencias superiores a 250 GHz. Usando superredes como detectores, demostramos que la generación de fonones acústicos en una película metálica combinada con los efectos de propagación no-lineal en el sustrato puede alcanzar frecuencias superiores a 1.0 THz.

Hasta aquí establecimos las diferencias entre un transductor metálico de banda ancha (el transductor más usado en experimentos de acústica de picosegundos), y los transductores orientados a la monocromaticidad basados en superredes y nanocavidades de semiconductores. Nos preguntamos si es posible cambiar las propiedades intrínsecas de la emisión de fonones acústicos de una película delgada metálica cambiando las condiciones de contorno acústicas del transductor. Introduciendo la película en una nanocavidad acústica (y formando lo que denominamos una nanocavidad híbrida metal-óxido) demostramos que es posible amplificar o inhibir la generación o emisión de fonones hacia el sustrato, de forma análoga al efecto Purcell estudiado en el contexto del electromagnetismo.

A continuación estudiamos el problema del diseño y optimización de filtros para hiper-sonido. Demostramos que dentro de los límites constructivos de las tecnologías actuales, con control de los espesores al nivel de la monocapa atómica, existen ordenamientos no-periódicos con las características espectrales deseadas. Para el diseño de estos dispositivos implementamos rutinas de optimización multivariable basadas en el algoritmo Nelder-Mead. Este algoritmo de búsqueda directa demostró ser muy eficiente en la localización de mínimos locales en la función objetivo. Mostramos que diseñando apropiadamente semillas inteligentes, es posible encontrar filtros de fonones acústicos con los requerimientos impuestos en un número relativamente bajo de iteraciones. Analizamos las propiedades de cambio de escala y periodicidad de la función reflectividad, características que permiten refinar y ajustar las distribuciones de espesores una vez finalizado el proceso de optimización. Asimismo, presentamos diversas estrategias para el diseño de las semillas de optimización. Diseñamos y optimizamos una serie de dispositivos fonónicos en el rango GHz-THz que tienen su análogo en fotónica: espejos de banda ancha, filtros de borde, filtros notch y filtros de color. De los diseños presentados, se eligieron tres que fueron crecidos por MBE. Estas estructuras fueron caracterizadas estructuralmente por HRXRD. El acuerdo obtenido entre los difractogramas experimentales y las simulaciones nos permitió utilizar los espesores nominales en las simulaciones del resto de los experimentos. Por otra parte, la caracterización de los niveles electrónicos se realizó mediante PL. Sin embargo ninguna de estas dos técnicas nos proporcionó información directa sobre los estados vibracionales de las muestras.

Para realizar una caracterización vibracional, llevamos a cabo experimentos de dispersión Raman en distintas geometrías. Esto nos permitió demostrar la complementariedad de

la información obtenida en BS y FS y motivó el estudio de la solución del problema inverso usando datos experimentales de dispersión Raman en múltiples geometrías para reducir el espacio de soluciones. A pesar de los resultados alentadores, identificamos dos limitaciones principales: por un lado, los modelos en la aproximación utilizada no son válidos en condición de resonancia electrónica, y los parámetros accesibles en la literatura corresponden a los materiales masivos, sin tener en cuenta efectos de confinamiento, por ejemplo en la constante fotoelástica o el índice de refracción. Por otro lado, los detalles de alta resolución de los espectros medidos quedaron ocultos por la resolución experimental limitada.

Si bien la espectroscopía Raman nos permitió acceder a los estados vibracionales de los filtros optimizados, no es una herramienta directa para caracterizar el funcionamiento de los filtros. Para ello, diseñamos un segundo conjunto de muestras operativo en el rango ~ 160 GHz, sobre los que realizamos experimentos de transmisión de fonones acústicos. Usando generadores y detectores metálicos separados por el sustrato y el dispositivo optimizado y utilizando técnicas de acústica de picosegundos, validamos experimentalmente el concepto de filtros aperiódicos. Además, con los resultados obtenidos evaluamos el desempeño de los dispositivos, y a la vez evidenciamos el rol de la superficie libre y del transductor metálico en la respuesta del filtro.

La utilización de las rutinas de optimización presentadas y el concepto de dispositivo aperiódico, no se limitan al contexto de filtros pasivos de fonones acústicos, sino que, por el contrario, pueden ser aplicadas para el diseño de otros dispositivos fonónicos como generadores y detectores de fonones coherentes, compensadores de dispersión, y retardadores de transmisión por mencionar algunas de las posibles aplicaciones tecnológicas.

En la tercera parte del trabajo, propusimos el uso de microcavidades ópticas en experimentos de generación coherente de fonones acústicos con el fin de amplificar las señales. Usando como estructura modelo una microcavidad óptica cuyo espaciador está formado por una nanocavidad acústica, pudimos evidenciar los efectos de las resonancias electrónicas, ópticas y acústicas en el dominio espectral, mediante experimentos de dispersión Raman, y en el dominio temporal mediante experimentos de acústica de picosegundos.

Introduciendo las nociones de excitación espacial selectiva, y de resonancia óptica, realizamos experimentos de dispersión Raman en una microcavidad en condición de doble resonancia óptica y en resonancia con un estado electrónico confinado en un pozo cuántico. Cambiando la posición relativa del láser respecto de la energía de este estado electrónico, analizamos los cambios tanto cualitativos como cuantitativos observados en los espectros, asociándolos a las diferentes resonancias logradas. Observamos una amplificación de las señales asociada al comportamiento resonante del campo eléctrico dentro de la cavidad, y un cambio de las reglas de selección debido al carácter estacionario del mismo dentro del espaciador óptico. Observamos también la excitación de modos acústicos confinados cuasimonocromáticos amplificados por la resonancia excitónica.

Con el fin de analizar la influencia del confinamiento óptico en los experimentos de generación y detección de fonones acústicos coherentes, desarrollamos un código de simulación basado en un modelo fotoelástico que tiene en cuenta tanto las condiciones de contorno acústicas como ópticas. En experimentos de dispersión Raman (generación incoherente de fonones) observamos la máxima amplificación de las señales cuando los campos incidente

y dispersado se encuentran sintonizados con el modo de la cavidad óptica. En cambio demostramos que, bajo condiciones de confinamiento óptico, los procesos de generación y detección de fonones acústicos coherentes responden a reglas de amplificación diferentes. Siempre considerando un mecanismo fotoelástico de interacción luz-hipersonido, observamos que la generación es proporcional a la intensidad del campo eléctrico en el centro de la cavidad. De manera semejante a lo observado en la dispersión Raman, la máxima amplificación se logra entonces cuando el pump se sintoniza exactamente con el modo óptico confinado. Por otro lado, demostramos que el proceso de detección es fuertemente dependiente de las características fotoelásticas de los materiales que forman el espaciador óptico. Considerando coeficientes fotoelásticos reales, la máxima sensibilidad en el proceso de detección no se logra en el centro del modo de la cavidad, sino donde la derivada de la reflectividad presenta los máximos valores absolutos. En el caso más general, la máxima amplificación de la generación no coincide con la máxima sensibilidad en la detección para una dada longitud de onda. Asimismo, vimos que el carácter estacionario del campo eléctrico dentro de la cavidad modifica las reglas de selección de los procesos de generación y detección de fonones acústicos coherentes de manera tal que el espectro generado coincide con el espectro detectado, lográndose una amplificación adicional.

La generación coherente de fonones acústicos de ultra-altas frecuencias requiere pulsos de luz ultra-cortos, y por lo tanto esto limita la máxima finesse que puede tener una microcavidad óptica para experimentos de acústica de picosegundos en el rango GHz-THz. Realizamos experimentos de pump-probe sobre una semicavidad óptica para evidenciar cambios en las reglas de selección, y sobre una microcavidad completa de relativamente baja finesse para estudiar las reglas de amplificación por confinamiento óptico. Los experimentos de generación coherente de fonones acústicos fueron realizados cambiando la longitud de onda del láser, la temperatura y los ángulos de incidencia. En el caso de la semicavidad, modificando la posición relativa del stop-band óptico respecto al láser observamos cambios cualitativos importantes en los espectros detectados. Al aumentar la reflectividad óptica, se observó un aumento tanto de la intensidad general de los espectros como de la intensidad relativa del modo de cavidad respecto al resto de los picos. En los experimentos realizados en resonancia óptica en la microcavidad completa, en todos los casos observamos señales amplificadas en las proximidades del modo óptico de cavidad, demostrando el rol del confinamiento del campo eléctrico. Notamos la presencia de dos máximos que no coincidían con el centro del modo óptico, indicando que la máxima amplificación no se produce cuando pump y probe están perfectamente sintonizados con la cavidad. Trabajando a bajas temperaturas, y eligiendo apropiadamente la posición del modo de la microcavidad logramos excitar selectivamente fonones localizados en el espaciador de la nanocavidad acústica dentro de la microcavidad óptica, mostrando comportamientos similares a los observados en los experimentos de dispersión Raman resonante.

Con el fin de lograr la máxima amplificación óptica posible, y extendiendo el concepto de doble resonancia óptica estudiado en el contexto de la dispersión Raman, propusimos y demostramos el concepto de doble amplificación óptica, que consiste en elegir apropiadamente los ángulos de incidencia de los haces pump y probe de manera que ambos procesos, generación y detección, se encuentren en condición de máxima amplificación para la longi-

tud de onda de trabajo. En experimentos realizados a temperatura ambiente, comparamos cómo cambian las intensidades relativas de los máximos de sensibilidad al modificar el ángulo de incidencia del probe, manteniendo el del pump en dirección prácticamente normal. Para un ángulo de incidencia del probe de aproximadamente 30° obtuvimos un máximo de la señal cuando el pump se acopla con el modo de la cavidad.

En el último capítulo de la tesis estudiamos superestructuras de múltiples nanocavidades acopladas. Comenzamos por el sistema más simple: una molécula fonónica formada por dos nanocavidades acopladas. Mediante experimentos de dispersión Raman en condición de doble resonancia óptica logramos evidenciar los efectos de acoplamiento, observando un corrimiento en la posición del modo confinado Raman activo. El excelente acuerdo obtenido entre las simulaciones y los espectros experimentales, motivó el estudio tanto teórico como experimental de superestructuras de cavidades acústicas más complejas. Aumentando el número de nanocavidades, e introduciendo un gradiente en las energías de los modos confinados, es posible replicar el efecto de un potencial fonónico lineal. En analogía a lo que le sucede a un electrón en presencia de un potencial periódico y un campo eléctrico lineal, el hipersonido experimenta oscilaciones de Bloch fonónicas en el espacio real, y en el dominio espectral aparecerán niveles discretos de WS.

Usando los mismos modelos utilizados para la molécula fonónica, desarrollamos una estrategia que permite evidenciar los niveles de WS en experimentos de dispersión Raman. Modificando la distribución del campo eléctrico dentro de la estructura con una microcavidad óptica demostramos que es posible excitar selectivamente modos colectivos del resonador completo. Asimismo realizamos un estudio experimental de las oscilaciones de Bloch fonónicas en el dominio temporal mediante la generación coherente de hipersonido. En un experimento donde tanto la generación como la detección con pulsos ultra-cortos de luz se realizaron en la misma muestra, observamos modos discretos separados por la frecuencia característica de las oscilaciones de Bloch, asociados a la WSL. Filtrando las curvas experimentales de reflectividad resuelta en tiempo, fue posible observar directamente los batidos característicos de las oscilaciones de Bloch acústicas. Para comprender la naturaleza de estas vibraciones simulamos la evolución temporal de los modos, y determinamos que se trata de fonones que oscilan entre dos minigaps acústicos, transfiriendo su energía entre los espaciadores que forman la estructura de nanocavidades acopladas. De esta manera, demostramos experimentalmente las oscilaciones de Bloch de fonones acústicos en estructuras formadas por nanocavidades acopladas.

En síntesis, en esta tesis hemos demostrado una amplia gama de fenómenos fonónicos en el rango GHz-THz, inspirándonos en algunos casos en fenómenos anteriormente estudiados en el contexto de la física del estado sólido y de la fotónica. Hemos desarrollado y estudiado nuevos dispositivos basados en multicapas de materiales semiconductores, de óxidos dieléctricos y metales, capaces de generar, detectar y controlar la propagación de fonones acústicos. Los resultados obtenidos abren nuevas posibilidades en la ingeniería de hipersonido en nanoestructuras, con implicancias en el control coherente de otros fonones, de fotones y de carga. Sin duda, los avances presentados en materia de generadores coherentes, filtros, cavidades y espejos tendrán impacto en el eventual desarrollo de un láser de sonido o sáser. La ingeniería de dispositivos complejos activos (en contraste con los filtros

pasivos), el diseño de experimentos de transmisión de fonones acústicos sin los efectos que introducen las superficies libres, y la implementación de los conceptos estudiados en aplicaciones tecnológicas y científicas son sólo algunas de las nuevas líneas de investigación que quedan abiertas a partir de este trabajo de tesis.

Bibliografía

- [1] P. Y. Yu y M. Cardona. *Fundamentals of Semiconductors: Physics and Material Properties*. Springer-Verlag, Berlin, 1996.
- [2] B. Jusserand y M. Cardona. Raman spectroscopy of vibrations in superlattices. In M. Cardona y G. Güntherodt, editors, *Light Scattering in Solids V: Superlattices and Other Microstructures*, volume 66 of *Topics in Applied Physics*. Springer-Verlag, Berlin, 1989.
- [3] M. Trigo, A. Bruchhausen, A. Fainstein, B. Jusserand, y V. Thierry-Mieg. *Phys. Rev. Lett.*, **89**, 227402, (2002). Confinement of Acoustical Vibrations in a Semiconductor Planar Phonon Cavity.
- [4] P. Lacharaise, A. Fainstein, B. Jusserand, y V. Thierry-Mieg. *Appl. Phys. Lett.*, **84**, 3274, (2004). Optical cavity enhancement of light–sound interaction in acoustic phonon cavities.
- [5] M. F. Pascual Winter, A. Fainstein, M. Trigo, T. Eckhause, R. Merlin, A. Cho, y J. Chen. *Phys. Rev. B*, **71**, 085305, (2005). InP acoustic cavity phonon spectra probed by Raman scattering.
- [6] G. Rozas, M. F. Pascual Winter, A. Fainstein, B. Jusserand, P. O. Vaccaro, S. Saravanan, y N. Saito. *Physical Review B (Condensed Matter and Materials Physics)*, **72**, 035331, (2005). Piezoelectric semiconductor acoustic cavities.
- [7] A. Fainstein, N. D. Lanzillotti Kimura, y B. Jusserand. Cavities and devices for sound and light. In W. Y. Lai, S. Pau, y O. D. Lopez, editors, *Society of Photo-Optical Instrumentation Engineers (SPIE) Conference Series*, volume 5592 of *Presented at the Society of Photo-Optical Instrumentation Engineers (SPIE) Conference*, pages 254–264, January 2005.
- [8] Thomas E. Hartman. *Journal of Applied Physics*, **33**, 3427-3433, (1962). Tunneling of a Wave Packet.
- [9] Ch. Spielmann, R. Szipöcs, A. Stingl, y F. Krausz. *Phys. Rev. Lett.*, **73**, 2308–2311, (1994). Tunneling of Optical Pulses through Photonic Band Gaps.
- [10] Suxia Yang, J. H. Page, Zhengyou Liu, M. L. Cowan, C. T. Chan, y Ping Sheng. *Phys. Rev. Lett.*, **88**, 104301, (2002). Ultrasound Tunneling through 3D Phononic Crystals.
- [11] Johannes Skaar, Ligang Wang, y Turan Erdogan. *Appl. Opt.*, **40**, 2183–2189, (2001). Synthesis of Thick Optical Thin-Film Filters with a Layer-Peeling Inverse-Scattering Algorithm.
- [12] T. Erdogan y V. Mizrahi. *Photonics Spectra*, **7**, 94, (Jul. 2003). Thin-Film Filters Come to Age.
- [13] P. Baumeister. *Journal of the Optical Society of America*, **48**, 955, (1958). Design of Multi-layer Filters by Successive Approximations.

- [14] C. Thomsen, J. Strait, Z. Vardeny, H. J. Maris, J. Tauc, y J. J. Hauser. *Phys. Rev. Lett.*, **53**, 989–992, (1984). Coherent Phonon Generation and Detection by Picosecond Light Pulses.
- [15] V. Narayanamurti, H. L. Störmer, M. A. Chin, A. C. Gossard, y W. Wiegmann. *Phys. Rev. Lett.*, **43**, 2012–2016, (1979). Selective Transmission of High-Frequency Phonons by a Superlattice: The “Dielectric” Phonon Filter.
- [16] B. Perrin, C. Rossignol, B. Bonello, y J. C. Jeannet. *Physica B: Condensed Matter*, **263-264**, 571 - 573, (1999). Interferometric detection in picosecond ultrasonics.
- [17] M. S. Skolnick, T. A. Fisher, y D. M. Whittaker. *Semicond. Sci. and Technol.*, **13**, 645-669, (1998). Strong coupling phenomena in quantum microcavity structures.
- [18] B. Sermage, S. Long, I. Abram, J. Y. Marzin, J. Bloch, R. Planel, y V. Thierry-Mieg. *Phys. Rev. B*, **53**, 16516–16523, (1996). Time-resolved spontaneous emission of excitons in a microcavity: Behavior of the individual exciton-photon mixed states.
- [19] J. Kasprzak, M. Richard, S. Kundermann, A. Baas, P. Jeambrun, J. M. J. Keeling, F. M. Marchetti, M. H. Szymańska, R. Andre, J. L. Staehli, V. Savona, P. B. Littlewood, B. Deveaud, y L. S. Dang. *Nature*, **443**, 409-414, (2006). Bose-Einstein condensation of exciton polaritons.
- [20] Hui Deng, David Press, Stephan Götzinger, Glenn S. Solomon, Rudolf Hey, Klaus H. Ploog, y Yoshihisa Yamamoto. *Phys. Rev. Lett.*, **97**, 146402, (2006). Quantum Degenerate Exciton-Polaritons in Thermal Equilibrium.
- [21] Guillaume Malpuech, Aldo Di Carlo, Alexey Kavokin, Jeremy J. Baumberg, Marian Zamfirescu, y Paolo Lugli. *Appl. Phys. Lett.*, **81**, 412-414, (2002). Room-temperature polariton lasers based on GaN microcavities.
- [22] G. Malpuech, A. Kavokin, A. Di Carlo, y J. J. Baumberg. *Phys. Rev. B*, **65**, 153310, (2002). Polariton lasing by exciton-electron scattering in semiconductor microcavities.
- [23] A. Fainstein y B. Jusserand. Raman scattering in resonant cavities. In M. Cardona y R. Merlin, editors, *Light Scattering in Solids IX: Novel Materials and Techniques*, volume 108 of *Topics in Applied Physics*, pages 17–110. Springer-Verlag, Berlin, 2007.
- [24] A. Fainstein, B. Jusserand, y V. Thierry-Mieg. *Phys. Rev. Lett.*, **75**, 3764–3767, (1995). Raman Scattering Enhancement by Optical Confinement in a Semiconductor Planar Microcavity.
- [25] A. Fainstein, M. Trigo, D. Oliva, B. Jusserand, T. Freixanet, y V. Thierry-Mieg. *Phys. Rev. Lett.*, **86**, 3411–3414, (2001). Standing Optical Phonons in Finite Semiconductor Superlattices Studied by Resonant Raman Scattering in a Double Microcavity.
- [26] A. Fainstein, B. Jusserand, y V. Thierry-Mieg. *Phys. Rev. Lett.*, **78**, 1576–1579, (1997). Cavity-Polariton Mediated Resonant Raman Scattering.
- [27] J. M. Worlock y M. L. Roukes. *Nature*, **421**, 802, (2003). News and Views: Son et Lumière. Comentario sobre Ref.[3].
- [28] E. M. Purcell. *Phys. Rev.*, **69**, 681, (1946). Spontaneous emission probabilities at radio frequencies.

- [29] W. Lukosz y R. E. Kunz. *Journal of the Optical Society of America (1917-1983)*, **67**, 1607, (1977). Light emission by magnetic and electric dipoles close to a plane interface. I. Total radiated power.
- [30] E. Snoeks, A. Lagendijk, y A. Polman. *Phys. Rev. Lett.*, **74**, 2459–2462, (1995). Measuring and Modifying the Spontaneous Emission Rate of Erbium near an Interface.
- [31] Eli Yablonovitch. *Phys. Rev. Lett.*, **58**, 2059–2062, (1987). Inhibited Spontaneous Emission in Solid-State Physics and Electronics.
- [32] P. Goy, J. M. Raimond, M. Gross, y S. Haroche. *Phys. Rev. Lett.*, **50**, 1903–1906, (1983). Observation of Cavity-Enhanced Single-Atom Spontaneous Emission.
- [33] Daniel Kleppner. *Phys. Rev. Lett.*, **47**, 233–236, (1981). Inhibited Spontaneous Emission.
- [34] A. Fainstein y Bernard Jusserand. *Phys. Rev. B*, **57**, 2402–2406, (1998). Performance of semiconductor planar microcavities for Raman-scattering enhancement.
- [35] A. Fainstein, B. Jusserand, y V. Thierry-Mieg. *Phys. Rev. B*, **53**, R13287–R13290, (1996). Raman efficiency in a planar microcavity.
- [36] P. Yeh, A. Yariv, y C.-S. Hong. *Journal of the Optical Society of America (1917-1983)*, **67**, 423–438, (1977). Electromagnetic propagation in periodic stratified media. I - General theory.
- [37] Guillaume Malpuech y Alexey Kavokin. *Semiconductor Science and Technology*, **16**, R1–R23, (2001). Picosecond beats in coherent optical spectra of semiconductor heterostructures: photonic Bloch and exciton-polariton oscillations.
- [38] Riccardo Sapienza, Paola Costantino, Diederik Wiersma, Mher Ghulinyan, Claudio J. Oton, y Lorenzo Pavesi. *Phys. Rev. Lett.*, **91**, 263902, (2003). Optical Analogue of Electronic Bloch Oscillations.
- [39] V. Agarwal, J. A. del Río, G. Malpuech, M. Zamfirescu, A. Kavokin, D. Coquillat, D. Scalbert, M. Vladimirova, y B. Gil. *Phys. Rev. Lett.*, **92**, 097401, (2004). Photon Bloch Oscillations in Porous Silicon Optical Superlattices.
- [40] N. D. Lanzillotti Kimura, A. Fainstein, y B. Jusserand. *Phys. Rev. B*, **71**, 041305, (2005). Phonon Bloch oscillations in acoustic-cavity structures.
- [41] N. D. Lanzillotti-Kimura, A. Fainstein, C. A. Balseiro, y B. Jusserand. *Physical Review B (Condensed Matter and Materials Physics)*, **75**, 024301, (2007). Phonon engineering with acoustic nanocavities: Theoretical considerations on phonon molecules, band structures, and acoustic Bloch oscillations.
- [42] Ch. Kittel. *Introduction to Solid State Physics*. Wiley, Nueva York, 7th. edition, 1996.
- [43] J. D. Joannopoulos, S. G. Johnson, J. N. Winn, y R. D. Meade. *Photonic Crystals: Molding the Flow of Light*. Princeton University Press, 2nd. edition, 2008.
- [44] K. Sakoda. *Optical Properties of Photonic Crystals*. Springer, 1st. edition, 2001.
- [45] Gunnar Björk, Susumu Machida, Yoshihisa Yamamoto, y Kazuhiro Igeta. *Phys. Rev. A*, **44**, 669–681, (1991). Modification of spontaneous emission rate in planar dielectric microcavity structures.

- [46] N. E. J. Hunt, E. F. Schubert, R. A. Logan, y G. J. Zydzik. *Applied Physics Letters*, **61**, 2287-2289, (1992). Enhanced spectral power density and reduced linewidth at 1.3 μm in an InGaAsP quantum well resonant-cavity light-emitting diode.
- [47] J. D. Achenbach y M. Kitahara. *The Journal of the Acoustical Society of America*, **81**, 595-598, (1987). Harmonic waves in a solid with a periodic distribution of spherical cavities.
- [48] R. Martínez-Sala, J. Sancho, J. V. Sánchez, V. Gómez, J. Llinares, y F. Meseguer. *Nature*, **378**, 241, (1995). Sound attenuation by sculpture.
- [49] J. O. Vasseur, P. A. Deymier, A. Khelif, Ph. Lambin, B. Djafari-Rouhani, A. Akjouj, L. Dobrzynski, N. Fettouhi, y J. Zemmouri. *Phys. Rev. E*, **65**, 056608, (2002). Phononic crystal with low filling fraction and absolute acoustic band gap in the audible frequency range: A theoretical and experimental study.
- [50] M. S. Kushwaha y P. Halevi. *The Journal of the Acoustical Society of America*, **101**, 3076-3076, (1997). Ultra-wideband filter for noise control.
- [51] N. D. Lanzillotti-Kimura, A. Fainstein, A. Lemaître, y B. Jusserand. *Appl. Phys. Lett.*, **88**, 083113, (2006). Nanowave devices for terahertz acoustic phonons.
- [52] Alexander A. Balandin. *Journal of Nanoscience and Nanotechnology*, **5**, 1015-1022(8), (July 2005). Nanophononics: Phonon Engineering in Nanostructures and Nanodevices.
- [53] G. Rozas, M. F. Pascual Winter, B. Jusserand, A. Fainstein, B. Perrin, E. Semenova, y A. Lemaître. *Physical Review Letters*, **102**, 015502, (2009). Lifetime of THz Acoustic Nanocavity Modes.
- [54] Paolo Giannozzi, Stefano de Gironcoli, Pasquale Pavone, y Stefano Baroni. *Phys. Rev. B*, **43**, 7231-7242, (1991). Ab initio calculation of phonon dispersions in semiconductors.
- [55] C. Colvard, T. A. Gant, M. V. Klein, R. Merlin, R. Fischer, H. Morkoc, y A. C. Gossard. *Phys. Rev. B*, **31**, 2080-2091, (1985). Folded acoustic and quantized optic phonons in (GaAl)As superlattices.
- [56] H. T. Grahn, H. J. Maris, J. Tauc, y B. Abeles. *Phys. Rev. B*, **38**, 6066-6074, (1988). Time-resolved study of vibrations of a-Ge:H/a-Si:H multilayers.
- [57] Wei Chen, Yu Lu, Humphrey J. Maris, y Gang Xiao. *Phys. Rev. B*, **50**, 14506-14515, (1994). Picosecond ultrasonic study of localized phonon surface modes in Al/Ag superlattices.
- [58] G. Panzarini, L. C. Andreani, A. Armitage, D. Baxter, M. S. Skolnick, V. N. Astratov, J. S. Roberts, A. V. Kavokin, M. R. Vladimirova, y M. A. Kaliteevski. *Phys. Rev. B*, **59**, 5082, (1999). Exciton-light coupling in single and coupled semiconductor microcavities: Polariton dispersion and polarization splitting.
- [59] Norberto Daniel Lanzillotti-Kimura. *Dispositivos para hipersonido y cavidades acústicas acopladas*. Trabajo Especial, Instituto Balseiro - Univ. Nac. de Cuyo - CNEA, Bariloche, Argentina, 2005.
- [60] C. Colvard, R. Merlin, M. V. Klein, y A. C. Gossard. *Phys. Rev. Lett.*, **45**, 298-301, (1980). Observation of Folded Acoustic Phonons in a Semiconductor Superlattice.
- [61] R. Merlin, K. Bajema, Roy Clarke, F. Y. Juang, y P. K. Bhattacharya. *Phys. Rev. Lett.*, **55**, 1768-1770, (1985). Quasiperiodic GaAs-AlAs Heterostructures.

- [62] M. Born y E. Wolf. *Principles of optics: electromagnetic theory of propagation, interference and diffraction of light*. Pergamon Press, Oxford, 1st. edition, 1964.
- [63] D. J. Lockwood, M. W. C. Dharma-wardana, G. C. Aers, y J.-M. Baribeau. *Applied Physics Letters*, **52**, 2040-2042, (1988). Substrate and capping layer effects on the phonon spectrum of ultrathin superlattices.
- [64] P. Voisin, G. Bastard, y M. Voos. *Phys. Rev. B*, **29**, 935–941, (1984). Optical selection rules in superlattices in the envelope-function approximation.
- [65] C. V. Raman. *Ind. J. Phys.*, **2**, 387, (1928).
- [66] Jianjun He, Bahram Djafari-Rouhani, y Jacques Sapiel. *Phys. Rev. B*, **37**, 4086–4098, (1988). Theory of light scattering by longitudinal-acoustic phonons in superlattices.
- [67] R. M. Martin y L. M. Falicov. Resonant raman scattering. In M. Cardona, editor, *Light Scattering in Solids I: Introductory Concepts*, volume 8 of *Topics in Applied Physics*. Springer-Verlag, Berlin, 2nd. edition, 1983.
- [68] H. Vogt. Coherent and hyper-raman techniques. In M. Cardona y G. Güntherodt, editors, *Light Scattering in Solids II: Basic Concepts and Instrumentation*, volume 50 of *Topics in Applied Physics*. Springer-Verlag, Berlin, 1982.
- [69] W. Hayes y R. Loudon. *Scattering of light by crystals*. Wiley-Interscience, New York, 1978.
- [70] A. Fainstein, B. Jusserand, y R. André. *Phys. Rev. B*, **57**, R9439–R9442, (1998). Polariton effects on first-order Raman scattering in II-VI microcavities.
- [71] Adnen Mlayah, Jean-Roch Huntzinger, y Nicolas Large. *Physical Review B (Condensed Matter and Materials Physics)*, **75**, 245303, (2007). Raman-Brillouin light scattering in low-dimensional systems: Photoelastic model versus quantum model.
- [72] J. Groenen, F. Poinssotte, A. Zwick, C. M. Sotomayor Torres, M. Prunnila, y J. Ahopelto. *Phys. Rev. B*, **77**, 045420, (2008). Inelastic light scattering by longitudinal acoustic phonons in thin silicon layers: From membranes to silicon-on-insulator structures.
- [73] B. Jusserand, D. Paquet, F. Mollot, F. Alexandre, y G. Le Roux. *Phys. Rev. B*, **35**, 2808–2817, (1987). Influence of the supercell structure on the folded acoustical Raman line intensities in superlattices.
- [74] P. V. Santos, L. Ley, J. Mebert, y O. Koblinger. *Phys. Rev. B*, **36**, 4858–4867, (1987). Frequency gaps for acoustic phonons in a-Si:H/a-SiNx:H superlattices.
- [75] Keith A. Nelson, R. J. Dwayne Miller, D. R. Lutz, y M. D. Fayer. *Journal of Applied Physics*, **53**, 1144-1149, (1982). Optical generation of tunable ultrasonic waves.
- [76] C. Thomsen, H. T. Grahn, H. J. Maris, y J. Tauc. *Phys. Rev. B*, **34**, 4129–4138, (1986). Surface generation and detection of phonons by picosecond light pulses.
- [77] O. Matsuda, T. Tachizaki, T. Fukui, J. J. Baumberg, y O. B. Wright. *Phys. Rev. B*, **71**, 115330, (2005). Acoustic phonon generation and detection in GaAs/Al_{0.3}Ga_{0.7}As quantum wells with picosecond laser pulses.

- [78] A. Devos, F. Poinssotte, J. Groenen, O. Dehaese, N. Bertru, y A. Ponchet. *Physical Review Letters*, **98**, 207402, (2007). Strong Generation of Coherent Acoustic Phonons in Semiconductor Quantum Dots.
- [79] Albrecht Bartels, Thomas Dekorsy, Heinrich Kurz, y Klaus Köhler. *Phys. Rev. Lett.*, **82**, 1044–1047, (1999). Coherent Zone-Folded Longitudinal Acoustic Phonons in Semiconductor Superlattices: Excitation and Detection.
- [80] Chi-Kuang Sun, Jian-Chin Liang, y Xiang-Yang Yu. *Phys. Rev. Lett.*, **84**, 179–182, (2000). Coherent Acoustic Phonon Oscillations in Semiconductor Multiple Quantum Wells with Piezoelectric Fields.
- [81] R. Merlin. *Solid State Commun.*, **102**, 207, (1997). Generating coherent THz phonons with light pulses.
- [82] K. Mizoguchi, M. Hase, S. Nakashima, y M. Nakayama. *Phys. Rev. B*, **60**, 8262–8266, (1999). Observation of coherent folded acoustic phonons propagating in a GaAs/AlAs superlattice by two-color pump-probe spectroscopy.
- [83] O. Matsuda y O. B. Wright. *Optical Society of America Journal B Optical Physics*, **19**, 3028–3041, (2002). Reflection and transmission of light in multilayers perturbed by picosecond strain pulse propagation.
- [84] Bernard Bonello, Bernard Perrin, y Clément Rossignol. *Journal of Applied Physics*, **83**, 3081–3088, (1998). Photothermal properties of bulk and layered materials by the picosecond acoustics technique.
- [85] B. Perrin. Génération et détection d’ondes acoustiques par des impulsions laser femtosecondes. In P. Laporte y F. Salin, editors, *Systèmes Femtosecondes*. Publications de l’Université de Saint Etienne, Saint Etienne, 2001.
- [86] W. M. Robertson, C. Baker, y C. Brad Bennett. *American Journal of Physics*, **72**, 255–257, (2004). Slow group velocity propagation of sound via defect coupling in a one-dimensional acoustic band gap array.
- [87] F. Van Der Biest, A. Sukhovich, A. Tourin, J. H. Page, B. A. van Tiggelen, Z. Liu, y M. Fink. *EPL (Europhysics Letters)*, **71**, 63–69, (2005). Resonant tunneling of acoustic waves through a double barrier consisting of two phononic crystals.
- [88] Kung-Hsuan Lin, Chieh-Feng Chang, Chang-Chi Pan, Jen-Inn Chyi, Stacia Keller, Umesh Mishra, Steven P. DenBaars, y Chi-Kuang Sun. *Applied Physics Letters*, **89**, 143103, (2006). Characterizing the nanoacoustic superlattice in a phonon cavity using a piezoelectric single quantum well.
- [89] Richard James, Scott M. Woodley, Catherine M. Dyer, y Victor F. Humphrey. *The Journal of the Acoustical Society of America*, **97**, 2041–2047, (1995). Sonic bands, bandgaps, and defect states in layered structures—Theory and experiment.
- [90] J. N. Munday, C. Brad Bennett, y W. M. Robertson. *The Journal of the Acoustical Society of America*, **112**, 1353–1358, (2002). Band gaps and defect modes in periodically structured waveguides.

- [91] A. Huynh, N. D. Lanzillotti-Kimura, B. Jusserand, B. Perrin, A. Fainstein, M. F. Pascual-Winter, E. Peronne, y A. Lemaître. *Physical Review Letters*, **97**, 115502, (2006). Subterahertz Phonon Dynamics in Acoustic Nanocavities.
- [92] E. Peronne y B. Perrin. *Ultrasonics*, **44**, e1203, (2006). Generation and detection of acoustic solitons in crystalline slabs by laser ultrasonics.
- [93] J. H. Page, Ping Sheng, H. P. Schriemer, I. Jones, Xiaodun Jing, y D. A. Weitz. *Science*, **271**, 634-637, (1996). Group Velocity in Strongly Scattering Media.
- [94] S. Longhi, P. Laporta, M. Belmonte, y E. Recami. *Phys. Rev. E*, **65**, 046610, (2002). Measurement of superluminal optical tunneling times in double-barrier photonic band gaps.
- [95] R. J. von Gutfeld y A. H. Nethercot. *Phys. Rev. Lett.*, **12**, 641-644, (1964). Heat Pulses in Quartz and Sapphire at Low Temperatures.
- [96] W. Eisenmenger y A. H. Dayem. *Phys. Rev. Lett.*, **18**, 125-127, (1967). Quantum Generation and Detection of Incoherent Phonons in Superconductors.
- [97] H. Kinder. *Phys. Rev. Lett.*, **28**, 1564-1567, (1972). Spectroscopy with Phonons on $Al_2O_3:V^{3+}$ Using the Phonon Bremsstrahlung of a Superconducting Tunnel Junction.
- [98] Rongliang Liu, G. D. Sanders, C. J. Stanton, Chang Sub Kim, J. S. Yahng, Y. D. Jho, K. J. Yee, E. Oh, y D. S. Kim. *Phys. Rev. B*, **72**, 195335, (2005). Femtosecond pump-probe spectroscopy of propagating coherent acoustic phonons in $In_xGa_{1-x}N/GaN$ heterostructures.
- [99] P. Basséras, S. M. Gracewski, G. W. Wicks, y R. J. D. Miller. *Journal of Applied Physics*, **75**, 2761-2768, (1994). Optical generation of high-frequency acoustic waves in GaAs/ $Al_xGa_{1-x}As$ periodic multilayer structures.
- [100] Nen-Wen Pu. *Phys. Rev. B*, **72**, 115428, (2005). Ultrafast excitation and detection of acoustic phonon modes in superlattices.
- [101] Yu-Chieh Wen, Li-Chang Chou, Hao-Hsiung Lin, Vitalyi Gusev, Kung-Hsuan Lin, y Chi-Kuang Sun. *Applied Physics Letters*, **90**, 172102, (2007). Efficient generation of coherent acoustic phonons in (111) InGaAs/GaAs multiple quantum wells through piezoelectric effects.
- [102] P. Hawker, A. J. Kent, L. J. Challis, A. Bartels, T. Dekorsy, H. Kurz, y K. Köhler. *Applied Physics Letters*, **77**, 3209-3211, (2000). Observation of coherent zone-folded acoustic phonons generated by Raman scattering in a superlattice.
- [103] N. M. Stanton, R. N. Kini, A. J. Kent, M. Henini, y D. Lehmann. *Phys. Rev. B*, **68**, 113302, (2003). Terahertz phonon optics in GaAs/AlAs superlattice structures.
- [104] M. Trigo, T. A. Eckhause, J. K. Wahlstrand, R. Merlin, M. Reason, y R. S. Goldman. *Applied Physics Letters*, **91**, 023115, (2007). Ultrafast optical generation and remote detection of terahertz sound using semiconductor superlattices.
- [105] S. Zhang. *Génération et détection de solitons acoustiques ultrabrefs - Application a l'étude des nanostructures*. PhD thesis, Université Pierre et Marie Curie, Paris, Francia, 2008.
- [106] H.-Y. Hao y H. J. Maris. *Phys. Rev. B*, **64**, 064302, (2001). Experiments with acoustic solitons in crystalline solids.

- [107] Otto L. Muskens, Andrey V. Akimov, y Jaap I. Dijkhuis. *Phys. Rev. Lett.*, **92**, 035503, (2004). Coherent Interactions of Terahertz Strain Solitons and Electronic Two-Level Systems in Photoexcited Ruby.
- [108] Peter Bermel, Alejandro Rodriguez, John D. Joannopoulos, y Marin Soljačić. *Physical Review Letters*, **99**, 053601, (2007). Tailoring Optical Nonlinearities via the Purcell Effect.
- [109] A. J. Campillo, J. D. Eversole, y H-B. Lin. *Phys. Rev. Lett.*, **67**, 437–440, (1991). Cavity quantum electrodynamic enhancement of stimulated emission in microdroplets.
- [110] A. Fainstein, B. Jusserand, y V. Thierry-Mieg. *Phys. Rev. B*, **53**, R13287, (1996). Raman efficiency in a planar microcavity.
- [111] B. Gayral, J.-M. Gérard, B. Sermage, A. Lemaître, y C. Dupuis. *Applied Physics Letters*, **78**, 2828–2830, (2001). Time-resolved probing of the Purcell effect for InAs quantum boxes in GaAs microdisks.
- [112] Antonio Badolato, Kevin Hennessy, Mete Atatüre, Jan Dreiser, Evelyn Hu, Pierre M. Petroff, y Atac Imamoglu. *Science*, **308**, 1158–1161, (2005). Deterministic Coupling of Single Quantum Dots to Single Nanocavity Modes.
- [113] Y. Ezzahri, S. Grauby, J. M. Rampnoux, H. Michel, G. Pernot, W. Claeys, S. Dilhaire, C. Rossignol, G. Zeng, y A. Shakouri. *Physical Review B (Condensed Matter and Materials Physics)*, **75**, 195309, (2007). Coherent phonons in Si/SiGe superlattices.
- [114] Y. L. Li, S. Choudhury, J. H. Haeni, M. D. Biegalski, A. Vasudevarao, A. Sharan, H. Z. Ma, J. Levy, Venkatraman Gopalan, S. Trolrier-McKinstry, D. G. Schlom, Q. X. Jia, y L. Q. Chen. *Physical Review B (Condensed Matter and Materials Physics)*, **73**, 184112, (2006). Phase transitions and domain structures in strained pseudocubic (100) SrTiO₃ thin films.
- [115] M. D. Biegalski, Y. Jia, D. G. Schlom, S. Trolrier-McKinstry, S. K. Streiffer, V. Sherman, R. Uecker, y P. Reiche. *Applied Physics Letters*, **88**, 192907, (2006). Relaxor ferroelectricity in strained epitaxial SrTiO₃ thin films on DyScO₃ substrates.
- [116] J. H. Haeni, P. Irvin, W. Chang, R. Uecker, P. Reiche, Y. L. Li, S. Choudhury, W. Tian, M. E. Hawley, B. Craigo, A. K. Tagantsev, X. Q. Pan, S. K. Streiffer, L. Q. Chen, S. W. Kirchoefer, J. Levy, y D. G. Schlom. *Nature*, **430**, 758–761, (2004). Room-temperature ferroelectricity in strained SrTiO₃.
- [117] A. Soukiassian, W. Tian, V. Vaithyanathan, J. H. Haeni, L. Q. Chen, X. X. Xi, D. G. Schlom, D. A. Tenne, H. P. Sun, X. Q. Pan, K. J. Choi, C. B. Eom, Y. L. Li, Q. X. Jia, C. Constantin, R. M. Feenstra, M. Bernhagen, P. Reiche, y R. Uecker. *Journal of Materials Research*, **23**, 1417–1432, (2008). Growth of nanoscale BaTiO₃/SrTiO₃ superlattices by molecular-beam epitaxy.
- [118] Seiji Mizuno y Shin-ichiro Tamura. *Phys. Rev. B*, **53**, 4549–4552, (1996). Resonant interaction of phonons with surface vibrational modes in a finite-size superlattice.
- [119] R. P. Stanley, R. Houdré, U. Oesterle, M. Ilegems, y C. Weisbuch. *Phys. Rev. A*, **48**, 2246–2250, (1993). Impurity modes in one-dimensional periodic systems: The transition from photonic band gaps to microcavities.

- [120] A. Soukiassian, W. Tian, D. A. Tenne, X. X. Xi, D. G. Schlom, N. D. Lanzillotti-Kimura, A. Bruchhausen, A. Fainstein, H. P. Sun, X. Q. Pan, A. Cros, y A. Cantarero. *Applied Physics Letters*, **90**, 042909, (2007). Acoustic Bragg mirrors and cavities made using piezoelectric oxides.
- [121] Chia-Lung Hsieh, Kung-Hsuan Lin, Shr-Bin Wu, Chang-Chi Pan, Jen-Inn Chyi, y Chi-Kuang Sun. *Applied Physics Letters*, **85**, 4735-4737, (2004). Reflection property of nano-acoustic wave at the air/GaN interface.
- [122] Y. Dumeige, I. Sagnes, P. Monnier, P. Vidakovic, I. Abram, C. Mériadec, y A. Levenson. *Phys. Rev. Lett.*, **89**, 043901, (2002). Phase-Matched Frequency Doubling at Photonic Band Edges: Efficiency Scaling as the Fifth Power of the Length.
- [123] Albrecht Bartels, Thomas Dekorsy, Heinrich Kurz, y Klaus Köhler. *Applied Physics Letters*, **72**, 2844-2846, (1998). Coherent control of acoustic phonons in semiconductor superlattices.
- [124] J.A. Nelder y R. Mead. *The Computer Journal*, **7(4)**, 308, (1965). A simplex method for function minimization.
- [125] William H. Press, Saul A. Teukolsky, William T. Vetterling, y Brian P. Flannery. *Numerical Recipes in C, The Art of Scientific Computing*. Cambridge University Press, 2 edition, 2002.
- [126] J.C. Lagarias, J.A. Reeds, M.H. Wright, y P.E. Wright. *SIAM J. Optim.*, **9(1)**, 112, (Dic. 1998). Convergence Properties of the Nelder-Mead Simplex Method in Low Dimensions.
- [127] K.I.M. McKinnon. *SIAM J. Optim.*, **9(1)**, 148, (Dic. 1998). Convergence of the Nelder-Mead Simplex Method to a Nonstationary Point.
- [128] P. Tseng. *SIAM J. Optim.*, **10(1)**, 269, (Nov. 1999). Fortified-Descent Simplicial Search Method: A General Approach.
- [129] C.T. Kelley. *SIAM J. Optim.*, **10(1)**, 43, (Oct. 1999). Detection and Remediation of Stagnation in the Nelder-Mead Algorithm Using a Sufficient Decrease Condition.
- [130] R. Merlin. Raman studies of fibonacci, thue-morse, and random superlattices. In M. Cardona y G. Güntherodt, editors, *Light Scattering in Solids V: Superlattices and Other Microstructures*, volume 66 of *Topics in Applied Physics*, page 214. Springer-Verlag, Berlin, 1989.
- [131] R. Merlin. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, **24**, 1791-1798, (1988). Structural and electronic properties of nonperiodic superlattices.
- [132] A. T. Macrander, G. P. Schwartz, y J. Bevk. *Phys. Rev. B*, **37**, 8459–8461, (1988). X-ray and Raman scattering measurements in finite, pseudomorphically strained, Fibonacci lattices.
- [133] N. D. Lanzillotti-Kimura, A. Fainstein, B. Jusserand, A. Lemaître, O. Mauguin, y L. Largeau. *Physical Review B (Condensed Matter and Materials Physics)*, **76**, 174301, (2007). Acoustic phonon nanowave devices based on aperiodic multilayers: Experiments and theory.
- [134] Bernard Jusserand, Daniel Paquet, Francis Mollot, Marie Christine Joncour, y Bernard Etienne. *Phys. Rev. B*, **39**, 3683–3687, (1989). Raman scattering on periodic Fibonacci superlattices: The building up of a quasiperiodic order.
- [135] Z. V. Popović, J. Spitzer, T. Ruf, M. Cardona, R. Nötzel, y K. Ploog. *Phys. Rev. B*, **48**, 1659–1664, (1993). Folded acoustic phonons in GaAs/AlAs corrugated superlattices grown along the [311] direction.

- [136] Sadao Adachi. *Journal of Applied Physics*, **58**, R1-R29, (1985). GaAs, AlAs, and $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$: Material parameters for use in research and device applications.
- [137] J. P. Pinan, R. Ouillon, P. Ranson, M. Becucci, y S. Califano. *The Journal of Chemical Physics*, **109**, 5469-5480, (1998). High resolution Raman study of phonon and vibron bandwidths in isotopically pure and natural benzene crystal.
- [138] T. Ruf, J. Spitzer, V. F. Sapega, V. I. Belitsky, M. Cardona, y K. Ploog. *Phys. Rev. B*, **50**, 1792–1806, (1994). Interface roughness and homogeneous linewidths in quantum wells and superlattices studied by resonant acoustic-phonon Raman scattering.
- [139] R. E. Slusher y C. Weisbuch. *Solid State Communications*, **92**, 149, (1994). Optical microcavities in condensed matter systems.
- [140] Y. Yamamoto y R.E. Slusher. *Physics Today*, **46**, 63, (1993). Optical Processes in Microcavities.
- [141] A. Fainstein y B. Jusserand. *Phys. Rev. B*, **54**, 11505–11516, (1996). Phonons in semiconductor planar microcavities: A Raman scattering study.
- [142] V. I. Belitsky, T. Ruf, J. Spitzer, y M. Cardona. *Phys. Rev. B*, **49**, 8263–8272, (1994). Theory of disorder-induced acoustic-phonon Raman scattering in quantum wells and superlattices.
- [143] T. Ruf, V. I. Belitsky, J. Spitzer, V. F. Sapega, M. Cardona, y K. Ploog. *Phys. Rev. Lett.*, **71**, 3035–3038, (1993). Raman scattering from folded phonon dispersion gaps.
- [144] V. F. Sapega, V. I. Belitsky, T. Ruf, H. D. Fuchs, M. Cardona, y K. Ploog. *Phys. Rev. B*, **46**, 16005–16011, (1992). Secondary emission and acoustic-phonon scattering induced by strong magnetic fields in multiple quantum wells.
- [145] M. Cazayous, J. Groenen, A. Zwick, A. Mlayah, R. Carles, J. L. Bischoff, y D. Dentel. *Phys. Rev. B*, **66**, 195320, (2002). Resonant Raman scattering by acoustic phonons in self-assembled quantum-dot multilayers: From a few layers to superlattices.
- [146] M. Cazayous, J. R. Huntzinger, J. Groenen, A. Mlayah, S. Christiansen, H. P. Strunk, O. G. Schmidt, y K. Eberl. *Phys. Rev. B*, **62**, 7243–7248, (2000). Resonant Raman scattering by acoustical phonons in Ge/Si self-assembled quantum dots: Interferences and ordering effects.
- [147] A. Fainstein y B. Jusserand. *Phys. Rev. B*, **57**, 2402, (1998). Performance of semiconductor microcavities for Raman-scattering enhancement.
- [148] M. Trigo, A. Fainstein, B. Jusserand, y V. Thierry-Mieg. *Phys. Rev. B*, **66**, 125311, (2002). Finit-size effects on acoustic phonons in GaAs/AlAs superlattices.
- [149] M. Giehler, T. Ruf, M. Cardona, y K. Ploog. *Phys. Rev. B*, **55**, 7724, (1997). Interference effects in acoustic-phonon Raman scattering from GaAs/AlAs mirror-plane superlattices.
- [150] M. F. Pascual Winter, G. Rozas, A. Fainstein, B. Jusserand, B. Perrin, A. Huynh, P. O. Vaccaro, y S. Saravanan. *Physical Review Letters*, **98**, 265501, (2007). Selective Optical Generation of Coherent Acoustic Nanocavity Modes.
- [151] A. Bartels, R. Cerna, C. Kistner, A. Thoma, F. Hudert, C. Janke, y T. Dekorsy. *Review of Scientific Instruments*, **78**, 035107, (2007). Ultrafast time-domain spectroscopy based on high-speed asynchronous optical sampling.

- [152] Zhaojian He, Shasha Peng, Feiyan Cai, Manzhu Ke, y Zhengyou Liu. *Physical Review E (Statistical, Nonlinear, and Soft Matter Physics)*, **76**, 056605, (2007). Acoustic Bloch oscillations in a two-dimensional phononic crystal.
- [153] Helios Sanchis-Alepuz, Yuriy A. Kosevich, y José Sánchez-Dehesa. *Physical Review Letters*, **98**, 134301, (2007). Acoustic Analogue of Electronic Bloch Oscillations and Resonant Zener Tunneling in Ultrasonic Superlattices.
- [154] R. P. Stanley, R. Houdré, U. Oesterle, M. Ilegems, y C. Weisbuch. *Applied Physics Letters*, **65**, 2093-2095, (1994). Coupled semiconductor microcavities.
- [155] P. Michler, M. Hilpert, y G. Reiner. *Applied Physics Letters*, **70**, 2073-2075, (1997). Dynamics of dual-wavelength emission from a coupled semiconductor microcavity laser.
- [156] P. Pellandini, R. P. Stanley, R. Houdré, U. Oesterle, M. Ilegems, y C. Weisbuch. *Applied Physics Letters*, **71**, 864-866, (1997). Dual-wavelength laser emission from a coupled semiconductor microcavity.
- [157] L. Pavesi, G. Panzarini, y L. C. Andreani. *Phys. Rev. B*, **58**, 15794–15800, (1998). All-porous silicon-coupled microcavities: Experiment versus theory.
- [158] B. Jusserand, T. Freixanet, y A. Fainstein. *Physica E Low-Dimensional Systems and Nanostructures*, **7**, 646-649, (2000). Normal incidence Raman scattering enhancement in double-cavity microresonators.
- [159] F. Bloch. *Zeitschrift für Physik A Hadrons and Nuclei*, **52**, 555, (1929). Über die Quantenmechanik der Elektronen in Kristallgittern.
- [160] C. Zener. *Proc. R. Soc. London A*, **145**, 523, (1934). A Theory of the Electrical Breakdown of Solid Dielectrics.
- [161] G. H. Wannier. *Reviews of Modern Physics*, **34**, 645-655, (1962). Dynamics of Band Electrons in Electric and Magnetic Fields.
- [162] G. Nenciu. *Reviews of Modern Physics*, **63**, 91-128, (1991). Dynamics of band electrons in electric and magnetic fields: rigorous justification of the effective Hamiltonians.
- [163] J. Feldmann, K. Leo, J. Shah, D. A. B. Miller, J. E. Cunningham, T. Meier, G. von Plessen, A. Schulze, P. Thomas, y S. Schmitt-Rink. *Phys. Rev. B*, **46**, 7252–7255, (1992). Optical investigation of Bloch oscillations in a semiconductor superlattice.
- [164] R. A. Logan y F. K. Reinhart. *Journal of Applied Physics*, **44**, 4172-4176, (1973). Optical waveguides in GaAs-AlGaAs epitaxial layers.
- [165] J. Dubard. *Etude de la dynamique des porteurs dans les semiconducteurs III-V sous excitations optiques*. PhD thesis, Université de Paris XI - Orsay, Paris, Francia, 1986.
- [166] J. J. LePore. *Journal of Applied Physics*, **51**, 6441-6442, (1980). An improved technique for selective etching of GaAs and $\text{Ga}_{1-x}\text{Al}_x\text{As}$.

Apéndice A

Interferómetro de Sagnac

El uso de técnicas interferométricas permite la detección de la parte imaginaria de una señal de reflectividad resuelta en tiempo. En este apéndice se describe y detalla la configuración experimental de un interferómetro de Sagnac, utilizado en algunas de las mediciones presentadas en esta tesis.

El funcionamiento de un interferómetro de Sagnac se basa en la interferencia de dos haces que recorren un circuito óptico en sentido inverso. En la Fig. A.1 se muestra un esquema del interferómetro de Sagnac utilizado. En primer lugar, el haz probe (polarizado) incide sobre un cubo polarizador. La polarización del probe se elige de manera tal que el haz resulte reflejado hacia el segundo cubo divisor. Esta será la polarización de referencia. El segundo cubo (no polarizador) es el encargado de dividir el probe en los dos haces de igual intensidad que recorrerán el circuito óptico en sentido inverso. La muestra se coloca en una posición asimétrica respecto de este cubo divisor. Los dos caminos ópticos entre el cubo y la muestras tienen diferente longitud. A estos dos caminos se los denomina brazos del interferómetro. De esta manera, los dos pulsos que salen del cubo divisor alcanzarán la muestra en dos instantes diferentes t y $t + \tau$, donde t es el tiempo de retardo respecto del pulso pump, y τ es el tiempo adicional que le toma a la luz recorrer la diferencia de camino entre los dos brazos del interferómetro.

Un rotador $\lambda/2$ y un retardador $\lambda/4$ se incluyen uno en cada brazo del circuito óptico, con el fin de maximizar la sensibilidad del interferómetro. Un retardador $\lambda/4$ usualmente se utiliza para producir un desfase entre dos componentes de polarización. La luz polarizada en el eje rápido se propaga más rápidamente que en el eje lento. En el caso del interferómetro de Sagnac, el retardador se alinea de manera tal que uno de sus ejes principales sea paralelo a la polarización del probe. De este modo, no se cambia la polarización de los pulsos que atraviesan el retardador $\lambda/4$. Por otro lado, el rotador se utiliza para cambiar la polarización del haz en 90° . Con este arreglo, los pulsos que recorren el interferómetro en sentido antihorario resultan desfasados mientras que los que circulan en sentido horario no son afectados.

El pulso que recorre el interferómetro en sentido horario (circuito azul en la Fig. A.1), pasa primero por el rotador que cambia su polarización y luego por el retardador con su polarización alineada según el eje lento (rápido). El segundo pulso recorre el interferómetro en sentido antihorario (flechas verdes en la Fig. 2.11) pasando primero por el retardador con

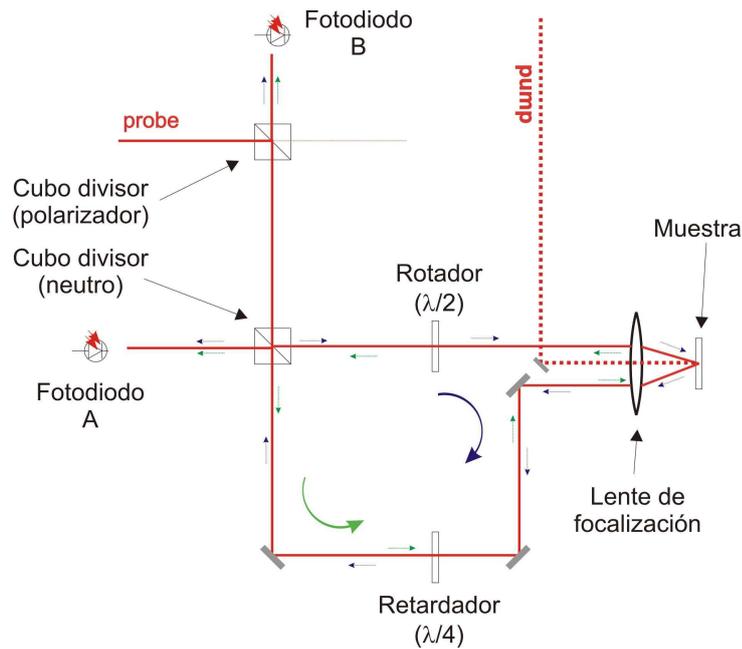


Figura A.1: Esquema de detección utilizando un interferómetro de Sagnac y dos fotodiodos. Al atravesar el segundo cubo divisor, el haz probe recorre el mismo circuito óptico en sentidos inversos.

su polarización alineada según el eje rápido (lento) y luego por el rotador $\lambda/2$ cambiando su polarización.

Para explicar con mayor detalle el funcionamiento del interferómetro de Sagnac utilizado, es necesario establecer algunos principios generales de óptica y las características de los elementos ópticos utilizados:

- Los cubos divisores no polarizantes, o las láminas semireflectantes (50 %-50 %) reflejan la mitad de la luz incidente, y refractan la otra mitad.
- La velocidad de la luz en los vidrios es del orden de dos tercios la velocidad de la luz en aire.
- Cuando un rayo de luz incide sobre una superficie desde un medio con un índice de refracción que el del material del otro lado de la superficie, la luz reflejada sufre un cambio de fase de exactamente media longitud de onda.
- El índice de refracción de un espejo perfecto puede considerarse como infinito, asociando un cambio de fase de media longitud de onda en las reflexiones en espejos.
- Las transmisiones a través de los semiespejos tienen un corrimiento de fase ϕ que depende solamente del índice de refracción del material transparente, y del espesor del mismo.

Teniendo en cuenta estas reglas, la intensidad de luz que llega a los detectores A y B puede ser calculada considerando los diferentes desfases introducidos por los espejos y por el cubo no polarizador en el circuito óptico.

Se analizará primero un esquema simplificado del interferómetro de Sagnac, en donde no se incluye la muestra, ni el retardador. Para ello, se considerará la intensidad de luz que llega a cada detector, dada por los haces que recorren el interferómetro en sentidos contrarios. Entre paréntesis se incluyen la polarización y desfase resultantes.

Detector A, sentido horario:

1. Reflexión en el cubo divisor ($\updownarrow, +2\phi + \pi$)
2. Rotación de la polarización ($\leftrightarrow, +2\phi + \pi$)
3. Reflexión en el cubo divisor ($\leftrightarrow, +4\phi + \pi$)

Detector A, sentido antihorario:

1. Transmisión a través del cubo divisor ($\updownarrow, +2\phi$)
2. Rotación de la polarización ($\leftrightarrow, +\phi$)
3. Transmisión a través del cubo divisor ($\leftrightarrow, +4\phi$)

Se puede observar que la intensidad detectada en el fotodiodo A corresponde a la suma de los campos electromagnéticos en contrafase, i.e., a una interferencia destructiva.

Detector B, sentido horario:

1. Reflexión en el cubo divisor ($\updownarrow, +2\phi + \pi$)
2. Rotación de la polarización ($\leftrightarrow, +2\phi + \pi$)
3. Transmisión a través del cubo divisor ($\leftrightarrow, +4\phi + \pi$)

Detector B, sentido antihorario:

1. Transmisión a través del cubo divisor ($\updownarrow, +2\phi$)
2. Rotación de la polarización ($\leftrightarrow, +2\phi$)
3. Reflexión en el cubo divisor ($\leftrightarrow, +4\phi + \pi$)

En este caso, puede verse que los haces se encuentran en fase, i.e., en condición de interferencia constructiva. De este modo, la intensidad en el detector B resulta máxima, mientras que en el detector A resulta mínima.

Para realizar el análisis del interferómetro de Sagnac utilizado durante los experimentos presentados en esta tesis, se requiere la incorporación del retardador $\lambda/4$ orientado con uno de sus ejes principales en posición vertical. De esta manera, no se cambia la polarización de los pulsos que atraviesan el retardador, sino que sólo se introduce un retardo de $\lambda/4$ para una de las polarizaciones, y cero para la otra. Asimismo, la muestra se coloca en una posición no simétrica respecto a la ubicación del cubo divisor y reflejará los pulsos que provienen de los dos brazos del interferómetro en dos instantes diferentes t y $t + \tau$.

Detector A, sentido horario:

1. Reflexión en el cubo divisor ($\updownarrow, +2\phi + \pi$)
2. Rotación de la polarización ($\leftrightarrow, +2\phi + \pi$)
3. Reflexión en la muestra $r(t)$
4. Transmisión a través del retardador ($\leftrightarrow, +2\phi + \pi$)
5. Reflexión en el cubo divisor ($\leftrightarrow, +4\phi + \pi$)

Detector A, sentido antihorario:

1. Transmisión a través del cubo divisor ($\updownarrow, +2\phi$)
2. Transmisión a través del retardador ($\updownarrow, +2\phi + \pi/2$)
3. Reflexión en la muestra $r(t+\tau)$
4. Rotación de la polarización ($\leftrightarrow, +2\phi + \pi/2$)

5. Transmisión a través del cubo divisor (\leftrightarrow , $+4\phi + \pi/2$)

El desfase entre ambos haces es de $\pi/2$

Detector B, sentido horario:

1. Reflexión en el cubo divisor (\downarrow , $+2\phi + \pi$)
2. Rotación de la polarización (\leftrightarrow , $+2\phi + \pi$)
3. Reflexión en la muestra $r(t)$
4. Transmisión a través del retardador (\leftrightarrow , $+2\phi + \pi$)
5. Transmisión a través del cubo divisor (\leftrightarrow , $+4\phi + \pi$)

Detector B, sentido antihorario:

1. Transmisión a través del cubo divisor (\uparrow , $+2\phi$)
2. Transmisión a través del retardador (\uparrow , $+2\phi + \pi/2$)
3. Reflexión en la muestra $r(t+\tau)$
4. Rotación de la polarización (\leftrightarrow , $+2\phi + \pi/2$)
5. Reflexión en el cubo divisor (\leftrightarrow , $+4\phi + 3\pi/2$)

En este caso, ambos haces llegan al detector también con un desfase de $\pi/2$ pero con signo contrario a lo que ocurre en el detector A.

La intensidad en cada uno de los detectores puede calcularse entonces como:

$$I_A = |r(t)e^{i(4\phi+\pi)}E_0 + r(t+\tau)e^{i(4\phi+\pi/2)}E_0|^2 \quad (\text{A.1})$$

$$I_B = |r(t)e^{i(4\phi+\pi)}E_0 + r(t+\tau)e^{i(4\phi+3\pi/2)}E_0|^2 \quad (\text{A.2})$$

El punto de trabajo del interferómetro se dará cuando la fase total sea tal que la intensidad de luz recibida en los detectores presenta la mayor derivada respecto a la fase. En los experimentos realizados, un ciclo de realimentación controla una celda Pockels que permite mantener esta fase constante, independientemente de cual sea el valor del ángulo ϕ .

En las expresiones A.1 y A.2 es posible sacar como factor común $|e^{i4\phi}E_0|^2$. Definiendo $r(t)$ $r(t+\tau)$ según:

$$r(t) = (1+\rho)e^{i\alpha}r_0 \quad (\text{A.3})$$

$$r(t+\tau) = (1+\rho')e^{i\alpha'}r_0, \quad (\text{A.4})$$

a primer orden de aproximaciones en ρ y α , y aplicando el teorema del coseno, las intensidades en los detectores estarán dadas por:

$$I_A \propto 2(1+\rho+\rho') + 2(1+\rho+\rho')\text{sen}(\alpha-\alpha') \quad (\text{A.5})$$

$$I_B \propto 2(1+\rho+\rho') - 2(1+\rho+\rho')\text{sen}(\alpha-\alpha') \quad (\text{A.6})$$

Definiendo

$$\rho_{tot} = \rho + \rho' \quad (\text{A.7})$$

$$\alpha_{tot} = \alpha - \alpha', \quad (\text{A.8})$$

y teniendo en cuenta que la detección sincrónica será sólo sensible a componentes con frecuencias que coincidan con las del modulador acusto-óptico, las intensidades detectadas

pueden ser reexpresadas de la siguiente manera:

$$I_A \propto \rho_{tot} + \text{sen}(\alpha_{tot}) \quad (\text{A.9})$$

$$I_B \propto \rho_{tot} - \text{sen}(\alpha_{tot}) \quad (\text{A.10})$$

De este modo es posible obtener las partes real e imaginaria de la variación de reflectividad sumando y restando las señales detectadas en ambos diodos, respectivamente.

Es importante notar que en la traza temporal $I_A - I_B$ detectada con un interferómetro como el descrito, la señal aparece duplicada, con signos invertidos. Así el pulso que recorrió el brazo largo del interferómetro llegará antes a los detectores que el pulso que inició su recorrido en el brazo corto. Por otro lado, dos pulsos que recorren el circuito óptico en sentidos contrarios llegan a la muestra con polarizaciones cruzadas, ocasionando que las reflectividades medidas puedan ser diferentes.

Apéndice B

Ataque químico selectivo en heteroestructuras GaAs/AlGaAs/AlAs

Una solución para realizar un ataque químico selectivo ideal tiene que ser capaz de remover selectivamente parte del cristal con una determinada composición química y dejar inalterado el resto de la muestra. El coeficiente de selectividad S de una solución se define según:

$$S = R_1/R_2, \tag{B.1}$$

donde R_1 y R_2 son las velocidades de reacción de los componentes 1 y 2 respectivamente. La solución óptima debería presentar factores S y R_1 grandes, y un factor R_2 pequeño. Se basa en el sistema sistema peróxido de hidrógeno - amonio para el ataque químico de GaAs selectivamente sobre $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$, y ácido fluorhídrico de baja concentración para el ataque selectivo de AlAs sobre $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$.

La solución utilizada fue presentada originalmente por Logan et al. [164], en 1973. En este trabajo se utilizaron los protocolos presentados por J. Dubard en la Ref. [165].

El espesor de las muestras al salir de la máquina de crecimiento es de aproximadamente $350 \mu\text{m}$, con una variación de $\pm 50 \mu\text{m}$. En general se ha trabajado con dos tipos de sustratos, uno que presenta una cara plana, pulida y una cara rugosa. Este es el tipo de sustrato más usual. Por otro lado se han utilizado también sustratos doblemente pulidos, cuyas caras se pueden utilizar para realizar crecimientos epitaxiales. Del lado del sustrato sobre el que se ha crecido la muestra, existe un anillo exterior plateado, a veces con líneas finas oscuras, este anillo es la sombra del soporte que se utiliza en la máquina de crecimiento para sostener el sustrato dentro de la cámara de crecimiento.

Para el estudio de las muestras se han realizado ataques químicos desde ambas caras de la muestra, dependiendo del tipo de experimento a realizar. Por un lado se han removido sustratos, de esta manera es posible realizar experimentos de dispersión Raman en geometría de FS, o experimentos de generación coherente de fonones en geometría de transmisión diferencial. Por otro lado, se han realizado ataques sobre la muestra propiamente

dicha con el fin de remover espejos ópticos en microcavidades ópticas. En este segundo caso se han utilizado las dos soluciones mencionadas anteriormente.

La solución para el ataque químico selectivo de GaAs sobre AlGaAs es la misma que la utilizada para el ataque químico selectivo de AlGaAs sobre AlAs. Consiste en una solución $H_2O_2(30\%) : NH_4OH(20\%) : H_2O$ 400 : 8 : 100. Para la preparación se procede de la siguiente manera:

1) Se prepara una solución de NH_4OH con la concentración indicada. Comercialmente se dispone de NH_4OH al 30 %.

2) Se colocan 400 ml de H_2O_2 (30 %) o 100 Vol.

3) Se agregan 8 ml de NH_4OH (20 %)

4) Finalmente se agregan 100 ml de agua destilada.

Para la remoción de sustratos de GaAs se armó un equipo de circulación que permite obtener un jet de aproximadamente 2 mm de diámetro similar al descrito en la Refs. [165, 166], sin el sistema de control automático. Es importante notar que la bomba de circulación utilizada para generar el jet no debe reaccionar químicamente con la solución de $H_2O_2(30\%) : NH_4OH(20\%)$.

Para el ataque selectivo inverso, i.e., de AlAs sobre AlGaAs, o de AlGaAs sobre GaAs, se utilizó una solución de ácido fluorhídrico en la siguiente proporción $HF(50\%) : H_2O$ 5:2000. Para la preparación de la solución se procede de la siguiente manera:

1) En un recipiente plástico se colocan 200 ml de H_2O destilada

2) Se agregan lentamente 0.5 ml de HF (50 %) con una pipeta descartable de plástico mientras se agita.

Debe tenerse en cuenta que para la manipulación de esta solución no pueden utilizarse materiales de vidrio ni metálicos. Asimismo, con ambas soluciones deben utilizarse guantes de nitrilo para evitar el contacto directo con la piel. La velocidad de remoción de AlAs con esta solución se estima en 9 nm/s a 2 °C.

Agradecimientos

*"(...) parecía que habíamos llegado al final del camino
y resulta que era sólo una curva
abierta a otro paisaje y a nuevas curiosidades."*

José Saramago

Este trabajo se realizó en el marco de una cotutela entre Instituto Balseiro, Universidad Nacional de Cuyo y la Université Pierre et Marie Curie. Quisiera expresar mi sincero agradecimiento al Programa Alβan de la Unión Europea, y a la Fundación YPF a través del programa de becas José A. Estenssoro por el apoyo a este a este proyecto. Asimismo quisiera agradecer a la Comisión Nacional de Energía Atómica, al Instituto Balseiro, y al Institut des NanoSciences de Paris por facilitarme el acceso a las instalaciones que permitieron desarrollar mi trabajo de investigación.

Llegar a este momento, la escritura de los agradecimientos, implica un huracán de sentimientos difíciles de plasmar en pocas palabras. Durante estos años pasó una infinidad de cosas, y muchos, por acción u omisión, tuvieron que ver con que yo llegue a esta instancia. A todos muchas gracias. Sabiendo que queda gente afuera, no puedo dejar de agradecer muy especialmente a las siguientes personas:

A Alex Fainstein, por abrirme las puertas de su laboratorio. Por la inagotable paciencia, los miles de mails y discusiones, porque de todo se aprende. Por el compromiso y el esfuerzo de acompañarme en este proceso. Por haberme dado la oportunidad a lo largo de los últimos cinco años y medio de trabajar y formarme con alguien simplemente brillante. Ha sido un verdadero honor ser su estudiante.

A Bernard Perrin, por haber aceptado codirigir este trabajo, por la confianza, y la experiencia de trabajar en un equipo francés. Sobre todo por haberme enseñado la técnica pump-probe para estudiar la dinámica de fonones en nanoestructuras, uno de los temas centrales de esta tesis. Por las tardes de té, y las charlas que los acompañaron.

A Bernard Jusserand, por las discusiones, las explicaciones, y las vueltas de tuerca que sin duda contribuyeron a que esta tesis y sus trabajos asociados lleguen a buen puerto. A Aristide Lemaître, sin cuyas excelentes muestras esta tesis hubiese sido totalmente diferente. A los colaboradores que también participaron en los trabajos que conforman esta tesis: Olivia Manguin, Ludovic Largeau, Audrey Miard, Agnès Huynh, Arsen Soukiassian, y Darrell Schlom.

A los pÓpticos Axel, Nico y Guille. Gracias por aguantarme, por hacer mi vida en la office (BRC) mÁs sencilla y divertida. Por compartir las alegrías y los buenos momentos, y por acompañarme en los malos. A Shuo, Tatiana, Juliette, y Christine por compartir la salle de thésards (PAR), los éxitos y los fracasos, siempre con la mejor buena onda. A Agnès, Manu, Roger, Michel y Valerie por recibirme, y haberme ayudado en mis reiteradas estadías en Paris.

A los profesores Carlos Balseiro y Jesse Groenen por invalorable discusiones científicas. A los rapporteurs y a los jurados por el tiempo y esfuerzo dedicados. A los profesores que estuvieron siempre cerca: Gladys Nieva, Gustavo Buscaglia, y Alberto Caneiro.

A Roberto y Eugenia. Sólo les diré gracias, porque mi gratitud no se puede plasmar en papel ni expresar en palabras. A todos los amigotes que sufrieron sucesivas y repetidas quemadas de cabeza, a los que me acompañaron de cerca o de lejos dependiendo de donde estaba (pero que al final siempre estuvieron cerca): Sol (v-tt), Axel, Mara, Ger, Guille, Carla, Victor, Gus, Lau, Io, Ana E., Ale, Cynthia, los palotinians, *et al.* A los que compartieron viajes y vacaciones Ceci, Rober, Sole, Fede, Axel, Erick, Cecilia, Jesse, Karine, Marcos y Carla.

A los que aguantaron mis ausencias y me apoyaron desde siempre: Ma, Pa, Nan, y Clau. A mis sobrinos por iluminarme.

A los que fueron mis brújulas, mis soportes, y mis guías, mis agradecimientos, todos.

San Carlos de Bariloche, Mayo 2009

Publicaciones asociadas a esta Tesis

A continuación se enumeran las publicaciones realizadas, asociadas con esta Tesis. Se presentan por capítulo al que corresponden

Capítulo 3: Superredes y nanocavidades acústicas

1. “*Subterahertz phonon dynamics in acoustic nanocavities*”,
A. Huynh, N. D. Lanzillotti-Kimura, B. Jusserand, B. Perrin, A. Fainstein, M.F. Pascual-Winter, E. Perónne, y A. Lemaître,
Phys. Rev. Lett. **97**, 115502 (2006).
2. “*Acoustic Bragg mirrors and cavities made using piezoelectric oxides*”,
A. Soukiassian, W. Tian, D. A. Tenne, X. X. Xi, D. G. Schlom,
N. D. Lanzillotti-Kimura, A. Bruchhausen, A. Fainstein, H. P. Sun, X. Q. Pan, A. Cros, y A. Cantarero,
Appl. Phys. Lett. **90**, 042909 (2007).
3. “*Subterahertz phonon dynamics in acoustic nanocavities*”,
N. D. Lanzillotti-Kimura, A. Huynh, B. Jusserand, B. Perrin, A. Fainstein, M.F. Pascual-Winter, E. Perónne, y A. Lemaître,
AIP Conference Proceedings **893**, 1131 (2007).
4. “*Subterahertz monochromatic acoustic wave propagation using semiconductor superlattices as transducers*”,
A. Huynh, B. Perrin, N. D. Lanzillotti-Kimura, B. Jusserand, A. Fainstein, y A. Lemaître,
Phys. Rev. B, Brief Report **78**, 233302 (2008).
5. “*Coherent phonon emission via modified density of states in a phononic cavity*”,
N. D. Lanzillotti-Kimura, A. Fainstein, B. Perrin, B. Jusserand, A. Soukiassian, X. X. Xi y D. G. Schlom,
En preparación, 2009.

Capítulo 4: Dispositivos aperiódicos para fonones acústicos

1. “*Nanowave devices for terahertz acoustic phonons*”,
N. D. Lanzillotti-Kimura, A. Fainstein, A. Lemaître, y B. Jusserand,
Appl. Phys. Lett. **88**, 083113 (2006).

2. “Acoustic phonon nanowave devices based on aperiodic multilayers: Experiments and theory”,
N. D. Lanzillotti-Kimura, A. Fainstein, A. Lemaître, B. Jusserand, O. Mauguin, y L. Largeau
Phys. Rev. B **76**, 174301 (2007).
3. “Aperiodic thin-film filters for acoustic phonons”,
N. D. Lanzillotti-Kimura, A. Fainstein, A. Lemaître, B. Jusserand, O. Mauguin, y L. Largeau
J. of Phys.: Conf. Proc. **92**, 012109 (2007).
4. “Hypersound thin-film filters for nanophononics”,
N. D. Lanzillotti-Kimura, B. Perrin, A. Fainstein, B. Jusserand, y A. Lemaître,
En preparación, 2009.

Capítulo 5: Acústica de picosegundos en microcavidades ópticas

1. “Coherent generation of acoustic phonons in an optical microcavity”,
N. D. Lanzillotti-Kimura, A. Fainstein, A. Huynh, B. Perrin, B. Jusserand, A. Miard,
y A. Lemaître,
Phys. Rev. Lett. **99**, 217405 (2007).
2. “Resonant Raman Scattering of Cavity Confined Acoustic Phonons in an Optical Microcavity”,
N. D. Lanzillotti-Kimura, A. Fainstein, B. Jusserand, y A. Lemaître,
AIP Conference Proceedings **893**, 11414 (2007).
3. “Coherent generation of acoustic phonons in an optical microcavity”,
N. D. Lanzillotti-Kimura, A. Fainstein, A. Huynh, B. Perrin, B. Jusserand, y A. Lemaître,
J. Phys.: Conf. Proc. **92**, 012016 (2007).
4. “Resonant Raman scattering of nanocavity-confined acoustic phonons”,
N. D. Lanzillotti-Kimura, A. Fainstein, B. Jusserand, y A. Lemaître,
Phys. Rev. B **79**, 035404 (2009).
5. “Phonon dynamics in optical microcavities: enhanced generation and detection”,
N. D. Lanzillotti-Kimura, A. Fainstein, A. Huynh, B. Perrin, B. Jusserand, A. Miard
y A. Lemaître,
AIP Conference Proceedings, en prensa, (2009).

Capítulo 6: Superestructuras formadas por cavidades acústicas acopladas

1. “Phononic molecules studied by Raman scattering”,
N. D. Lanzillotti-Kimura, A. Fainstein, B. Jusserand, y A. Lemaître,
AIP Conference Proceedings, en prensa, (2009).

2. “*Subterahertz phononic Bloch oscillations and Wannier Stark ladders*”,
N. D. Lanzillotti-Kimura, A. Fainstein, B. Perrin, B. Jusserand, y A. Lemaître,
En preparación, 2009.

Otras publicaciones realizadas durante el período de la Tesis

1. “*Probing Nanoscale Ferroelectricity by Ultraviolet Raman Spectroscopy*”,
D. A. Tenne, A. Bruchhausen, N. D. Lanzillotti-Kimura, A. Fainstein, R. S. Katiyar, A. Cantarero, A. Soukiassian, V. Vaithyanathan, J. H. Haeni, W. Tian, D. G. Schlom, K. J. Choi, D. M. Kim, C. B. Eom, H. P. Sun, X. Q. Pan, Y. L. Li, L. Q. Chen, Q. X. Jia, S. M. Nakhmanson, K. M. Rabe, y X. X. Xi,
Science **313**, 1614 (2006).
2. “*Raman scattering interferences as a probe of vertical coherence in multilayers of carbon-induced Ge quantum dots*”,
P. D. Lacharmoise, A. Bernardi, A. R. Goñi, M. I. Alonso, M. Garriga, N. D. Lanzillotti-Kimura, y A. Fainstein,
Phys. Rev. B **76**, 155311 (2007).
3. “*Acoustic properties of nanoscale oxide heterostructures probed by UV Raman spectroscopy*”,
A. Bruchhausen, N. D. Lanzillotti-Kimura, A. Fainstein, A. Soukiassian, D. A. Tenne, D. Schlom, X. X. Xi, y A. Cantarero,
J. Phys.: Conf. Proc. **92**, 012160 (2007).
4. “*Phonon engineering with acoustic nanocavities: Theoretical considerations on phonon molecules, band structures, and acoustic Bloch oscillations*”,
N. D. Lanzillotti-Kimura, A. Fainstein, C. A. Balseiro, y B. Jusserand,
Phys. Rev. B **75**, 024301 (2007).

