



UNIVERSIDAD NACIONAL AUTÓNOMA DE MÉXICO

FACULTAD DE CIENCIAS

Plasmónica: Estudio sobre la estadística de emisión de nanocristales de silicio en presencia de nanopartículas metálicas. Combinación de Interferometría Hanbury-Brown & Twiss y microscopía confocal.

T E S I S

QUE PARA OBTENER EL TÍTULO DE:

FÍSICO

P R E S E N T A:

ERIKA COLÍN ULLOA



DIRECTOR DE TESIS:
DR. JORGE ALEJANDRO REYES ESQUEDA

2015

Ciudad Universitaria, D. F.



Universidad Nacional
Autónoma de México

Dirección General de Bibliotecas de la UNAM

Biblioteca Central



UNAM – Dirección General de Bibliotecas
Tesis Digitales
Restricciones de uso

DERECHOS RESERVADOS ©
PROHIBIDA SU REPRODUCCIÓN TOTAL O PARCIAL

Todo el material contenido en esta tesis esta protegido por la Ley Federal del Derecho de Autor (LFDA) de los Estados Unidos Mexicanos (México).

El uso de imágenes, fragmentos de videos, y demás material que sea objeto de protección de los derechos de autor, será exclusivamente para fines educativos e informativos y deberá citar la fuente donde la obtuvo mencionando el autor o autores. Cualquier uso distinto como el lucro, reproducción, edición o modificación, será perseguido y sancionado por el respectivo titular de los Derechos de Autor.

Hoja de Datos del Jurado

1. Datos del alumno

Colín
Ulloa
Erika
55 27 43 57 57
Universidad Nacional Autónoma de México
Facultad de Ciencias
Física
304293254

2. Datos del tutor

Dr.
Jorge Alejandro
Reyes
Esqueda

3. Datos del sinodal 1

Dr.
Alfred Barry
U'Ren
Cortés

4. Datos del sinodal 2

Dra.
Citlali
Sánchez
Aké

5. Datos del sinodal 3

Dra.
María Beatriz
de la Mora
Mojica

6. Datos del sinodal 4

Dr.
Jorge Amin
Seman
Harutinian

7. Datos del trabajo escrito.

Plasmónica: Estudio sobre la estadística de emisión de nanocristales de silicio en presencia de nanopartículas metálicas. Combinación de Interferometría Hanbury-Brown & Twiss y microscopía confocal.

63 p.
2015

Agradecimientos.

A mis padres, por el esfuerzo y los sacrificios que realizaron para que sus hijos tuvieran mejores oportunidades. Gracias por la paciencia y comprensión que me brindaron para aprovechar una de las cosas por las que ustedes trabajaron tanto. Agradezco su apoyo infinito e incondicional, por enseñarme que la mejor herencia que un padre le puede dejar a un hijo es el conocimiento.

Y como mujer, gracias mamá por ser siempre un ejemplo para mí.

A mis hermanos, Edgar y Edith, por su ejemplo y su apoyo también incondicional.

A mi hermana Edna por estar siempre conmigo y ser mi mejor amiga.

A mis sobrinos, Victoria y Emiliano, por ser el amor, la ternura y la felicidad de mi vida.

También quiero agradecer a mi asesor, el Dr. Alejandro Reyes Esqueda, por su apoyo en todo momento, tanto personal como académico, por la confianza y seguridad depositada en mí para la realización de este trabajo.

Quiero agradecer especialmente al Dr. Víctor Velázquez Aguilar por su guía constante, por su apoyo para que yo pudiera entender y realizar esta tesis.

Además, quiero agradecer a mis compañeros del Laboratorio Óptica de Superficies: Oswaldo Sánchez, Luis Carlos Méndez, Juan Gómez, la Dra. Beatriz de la Mora, la Dra. Emma García y el Dr. Jhovani Bornacelli, por su apoyo en mis experimentos, sus consejos y su amistad.

También quiero agradecer a Adrián Aupart, Erick Barrios y Raúl Caudillo, miembros del Grupo QO (Grupo de Óptica Cuántica de la Facultad de Ciencias): Gracias por su apoyo para mejorar mi experimento, por su ayuda para realizar las mediciones y aclarar mis dudas, por las pláticas sobre mi tesis que siempre fueron esclarecedoras e interesantes y por los momentos divertidos, que fueron muchos. Gracias por brindarme su amistad y cariño que son invaluable para mí.

Finalmente, quiero agradecer a los miembros de mi jurado por su interés en mi tema de tesis, por los comentarios, propuestas y explicaciones que ayudaron a mejorar este trabajo de investigación.

Resumen.

El objetivo de esta tesis fue construir un microscopio confocal acoplado a un interferómetro Hanbury Brown and Twiss para hacer estudios de estadística de fotones en materiales fotoluminiscentes hechos a base de silicio.

Mediante la función de correlación de segundo orden $g^2(\tau)$, se esperaron obtener estadísticas correspondientes a fuentes de fotones individuales (antibunching) en muestras hechas en matrices de SiO_2 con nanocristales de silicio (muestra Si) y nanocristales de silicio con implantaciones de nanopartículas de plata (muestra SiAg).

Para validar el funcionamiento del experimento, se caracterizaron además los tipos de luz correspondientes a una fuente coherente (láser pulsado 355nm Nd:YAG y láser continuo de 405nm) y una con amontonamiento de fotones (muestra de silicio poroso).

Los valores obtenidos para la función de correlación en el tiempo cero, $g^2(0)$, fueron los siguientes:

- $g^2(0)$ Silicio poroso = 1.30 ± 0.19
- $g^2(0)$ Láser 355 nm Nd:YAG = 1.04 ± 0.01
- $g^2(0)$ Láser 405 nm = 1.05 ± 0.01
- $g^2(0)$ Muestra Si = 0.71 ± 0.04 y 0.71 ± 0.03
- $g^2(0)$ Muestra SiAg = 0.69 ± 0.04

Se logró calibrar el experimento pues la correlación correspondiente a la fuente coherente (láseres) y a la fuente con amontonamiento de fotones (silicio poroso) fue concordante con los valores teóricos $g^2(0) = 1$ y $g^2(0) > 1$ respectivamente.

Para las correlaciones correspondientes a la muestra Si y SiAg se logró verificar que es posible observar antibunching ($g^2(0)$ teórico < 1) de puntos cuánticos de silicio (nanocristales de silicio) implantados debajo de la superficie de una matriz de SiO_2 .

Algunas complicaciones experimentales como regiones de la muestra donde los puntos cuánticos no se activan, concentración no controlada de los nanocristales y nanopartículas en la muestra y falta de seguridad de que el microscopio confocal fuera capaz de ver sólo un punto, dificultaron obtener una medida más precisa de antibunching.

Para la muestra SiAg, el valor comprueba que la estadística antibunching se conserva ante la presencia de nanopartículas metálicas, lo cual genera una mejora a las propiedades de las muestras hechas con puntos cuánticos, pues de algún modo su presencia amplifica la intensidad de la luz emitida por estos.

Objetivos:

- Construir un microscopio confocal para observar la fotoluminiscencia de muestras hechas de nanocristales de silicio con implantaciones de nanopartículas de plata.
- Medir la correlación de la intensidad de la fotoluminiscencia mediante la colocación de un interferómetro Hanbury Brown and Twiss (HBT).
- Validar el experimento construido mediante el análisis de la correlación de una fuente con amontonamiento de fotones (silicio poroso) y una fuente coherente (láser pulsado 355 nm y láser continuo 405 nm).
- Obtener el valor de la función de correlación de segundo orden para las muestras hechas de nanocristales de silicio con y sin implantaciones de nanopartículas de plata.

Índice

Introducción.....	1
Capítulo 1. Tipos de fuentes de luz.....	3
1.1. Estadística de una fuente de luz.....	3
1.1.1. Luz Poissoniana.....	4
1.1.2. Luz super-Poissoniana.....	9
1.1.3. Luz sub-Poissoniana.....	9
1.2. Correlación de segundo orden cuántica.....	10
1.3. Fuentes de Luz Antibunching.....	16
Capítulo 2. Plasmónica. Nanomateriales afectados por efectos de campo cercano. ..	18
2.1. Puntos cuánticos de Si embebidos en una matriz de SiO ₂	20
2.2. Emisores individuales acoplados a Plasmones de Superficie. Nanopartículas metálicas.....	24
2.3. Espectros de absorción y fotoluminiscencia (emisión y excitación).....	27
Capítulo 3. Medición de la estadística de emisión.....	33
3.1. Microscopio confocal.....	33
3.1.1. Importancia del pinhole.....	35
3.2. Interferómetro HBT.....	37
3.2.1. Coherencia.....	38
3.2.2. Principio del interferómetro HBT.....	39
Capítulo 4. Resultados y análisis.....	44
4.1. Montaje experimental.....	44
4.2. Imágenes obtenidas.....	48
4.3. Correlaciones obtenidas.....	50
Conclusiones.....	58
Bibliografía.....	61

Introducción.

El interferómetro Hanbury Brown and Twiss (HBT), que al principio surgió en 1956 para superar las limitaciones del interferómetro de Michelson estelar, se convirtió en un acontecimiento importante en la comunidad científica de esos años, pues sus resultados se opusieron a la idea clásica que en ese tiempo muchos científicos tenían acerca de los fotones.

Este interferómetro y el trabajo de varios científicos por explicarlo teóricamente, principalmente el de Roy J. Glauber, que fue galardonado en el 2005 fue con el premio Nobel de Física por su trabajo sobre el efecto Hanbury Brown y Twiss y su descripción cuántica de campos de luz, condujeron al desarrollo de la óptica cuántica moderna.

Hoy en día, el interferómetro HBT es empleado en diversos campos de la Física, pues el efecto HBT se aplica a todo tipo de partículas.

Un ejemplo de aplicación es la configuración que se hace de un interferómetro HBT que es colocado en la salida de un microscopio confocal, cuyo objetivo es probar la naturaleza cuántica de la fluorescencia de varias fuentes de luz que son potencialmente emisoras de fotones individuales (los puntos cuánticos hechos de semiconductores son algunos de los candidatos que existen como posibles fuentes de fotones individuales estables. En esta tesis fueron empleados puntos cuánticos hechos de silicio).

El estudio de este tipo de fuentes es importante, no sólo debido a que son un claro ejemplo de los aspectos fundamentales de la mecánica cuántica, sino porque poder producir fuentes de fotones individuales que emitan controladamente, significará un avance para la criptografía cuántica y computación cuántica.

Los temas anteriores serán descritos de forma más amplia en esta tesis, la cual se desarrolla de la siguiente forma:

El capítulo 1 es una breve explicación de los tipos de fuentes que existen y su clasificación. Después es mencionada la función de correlación de segundo orden y se menciona la clasificación que establece para la luz.

El capítulo 2 trata de la descripción de los nanomateriales estudiados, se hace mención de las propiedades que los hacen candidatos como fuentes de fotones individuales.

El capítulo 3 describe la teoría del microscopio confocal y del interferómetro HBT.

El capítulo 4 presenta la descripción del montaje realizado, las imágenes y correlaciones obtenidas en este trabajo de investigación.

Capítulo 1. Tipos de fuentes de luz.

En este capítulo se describirán los tres tipos de clasificación de la luz (Poissoniana, super-Poissoniana y sub-Poissoniana) que se obtienen de la determinación de la estadística de fotones que emite una fuente. Para obtener una nueva clasificación, se introducirá el concepto de correlación de segundo orden, la cual permite dar una descripción más clara de la naturaleza cuántica de la luz respecto a la clasificación que corresponde a las fuentes sub-Poissonianas.

1.1. Estadística de una fuente de luz.

Consideremos una fuente, cuya intensidad ha sido atenuada, que emite su señal a un detector de luz (tubo fotomultiplicador o fotodiodo de avalancha) conectado a un contador de fotones como se muestra en la figura 1.1:

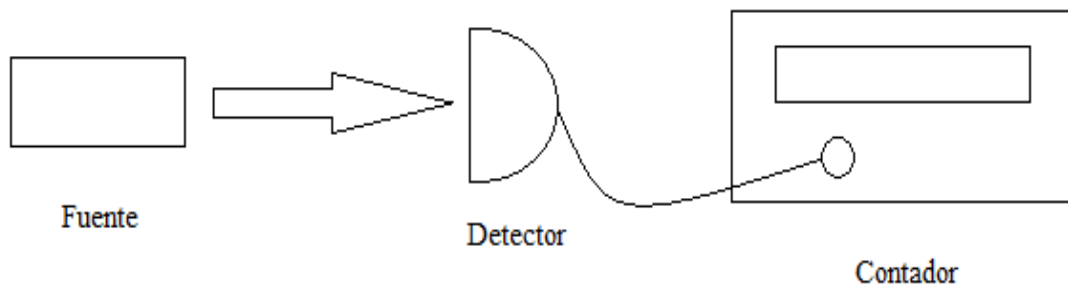


Figura 1.1. Detección de un haz de luz mediante un detector (tubo fotomultiplicador o fotodiodo de avalancha) conectado a un contador de fotones.

En un intervalo de tiempo T , el número de fotones será contado y oscilará dentro de un promedio.

Si partimos de que la luz está conformada por una corriente de fotones, y que la fuente emite un haz monocromático, coherente, de frecuencia angular ω e intensidad

constante I , el flujo de fotones Φ se define como el promedio del número de fotones que pasan a través de una sección transversal del haz por unidad de tiempo, y está dado por el flujo de energía dividido entre la energía de los fotones individuales:

$$\Phi = \frac{IA}{h\omega} \equiv \frac{P}{h\omega} \text{ fotones } s^{-1} \quad (1.1)$$

donde A es el área del haz y P su potencia.

De esto, el cálculo del promedio de fotones contenidos en todo el haz nos dará un número entero. Si se va acortando el segmento de dicho haz, observaremos que, si el tiempo de recuento T es más pequeño, o el haz disminuye de longitud, el promedio de los fotones contenidos en cada segmento comenzará a fraccionarse, lo cual contradice la definición de fotón como un paquete discreto de energía (Fox, 2006) (Saleh & Teich, 1991).

Esto muestra que aunque el promedio de los fotones contados puede tener un valor definido, el número de fotones en una escala corta de tiempo fluctúa debido a la naturaleza discreta de los fotones.

Al estudiar los fotones estadísticamente, la naturaleza de estas fluctuaciones permite clasificar a la luz en tres tipos:

1.1.1. Luz Poissoniana.

Desde una perspectiva clásica, la luz que emite la fuente del ejemplo anterior es el tipo más estable de luz que puede tenerse. Por tanto, se analizará la estadística de ésta para tomarla como punto de referencia en la clasificación de los demás tipos de luz.

Tomando el ejemplo anterior, el número promedio de fotones contenidos en una longitud L del haz de la fuente está dado por la siguiente ecuación:

$$\bar{n} = \frac{\Phi L}{c} \quad (1.2)$$

donde Φ es el flujo de fotones dado por la ecuación 1.1.

Sabemos que si L es lo suficientemente grande, el valor \bar{n} será un número entero. Ahora, subdividiendo el haz en N segmentos de longitud L/N , si N tiende a un valor grande, habrá una probabilidad muy pequeña $p = \bar{n}/N$ de encontrar un fotón en un solo segmento y una probabilidad casi nula de encontrar dos o más fotones.

La probabilidad $P(n)$ de encontrar n fotones dentro del haz está dada por la probabilidad de encontrar n sub-segmentos que contienen un fotón y $(N-n)$ que no contienen fotones, la cual es una distribución binomial:

$$P(n) = \frac{N!}{n!(N-n)!} p^n (1-p)^{N-n} \quad (1.3)$$

como $p = \bar{n}/N$, entonces

$$P(n) = \frac{N!}{n!(N-n)!} (\bar{n}/N)^n (1 - \bar{n}/N)^{N-n} \quad (1.4)$$

reordenando la ecuación 1.4,

$$P(n) = \frac{1}{n!} \left(\frac{N!}{(N-n)! N^n} \right) \bar{n}^n (1 - \bar{n}/N)^{N-n} \quad (1.5)$$

tomando el límite $N \rightarrow \infty$ y usando la fórmula de Stirling:

$$\lim_{N \rightarrow \infty} [\ln N!] = \ln N - N \quad (1.6)$$

Puede verse que

$$\lim_{N \rightarrow \infty} \left[\ln \frac{N!}{(N-n)! N^n} \right] = 0 \quad (1.7)$$

entonces

$$\lim_{N \rightarrow \infty} \left[\frac{N!}{(N-n)!N^n} \right] = 1 \quad (1.8)$$

Aplicando el teorema del binomio y comparando este límite con la expansión de la serie $\exp(-\bar{n})$, se tiene:

$$\begin{aligned} \left(1 - \frac{\bar{n}}{N}\right)^{N-n} &= 1 - (N-n)\frac{\bar{n}}{N} + \frac{1}{2!}(N-n)(N-n-1)\left(\frac{\bar{n}}{N}\right)^2 - \\ &\dots 1 - \bar{n} + \frac{\bar{n}^2}{2!} - \dots = \exp(-\bar{n}) \end{aligned} \quad (1.9)$$

entonces:

$$\lim_{N \rightarrow \infty} [P(n)] = \frac{1}{n!} \cdot 1 \cdot \bar{n}^n \cdot \exp(-\bar{n}) \quad (1.10)$$

Por lo tanto la estadística de la fuente que se acaba de describir está dada por:

$$P(n) = \frac{\bar{n}^n}{n!} e^{-\bar{n}}, n = 0, 1, 2, \dots \quad (1.11)$$

la cual es una distribución de Poisson (Fox, 2006).

Esta distribución se caracteriza por las fluctuaciones por encima y por debajo del valor medio y pueden cuantificarse en términos de la varianza. La varianza para una distribución de Poisson está definida como:

$$\text{Var}(n) \equiv \Delta n^2 = \sum_{n=0}^{\infty} (n - \bar{n})^2 P(n) = \sum_{n=0}^{\infty} n^2 P(n) - \bar{n}^2 \quad (1.12)$$

donde Δn es la desviación estándar (Saleh & Teich, 1991).

Simplificando los términos de la ecuación 1.12 se tiene:

$$\sum_{n=0}^{\infty} n^2 P(n) = \sum_{n=0}^{\infty} (n^2 - n + n) P(n) = \sum_{n=0}^{\infty} n(n-1) P(n) + \bar{n} \quad (1.13)$$

$$\begin{aligned}
\sum_{n=0}^{\infty} n(n-1)P(n) &= e^{-\bar{n}} \sum_{n=0}^{\infty} n(n-1) \frac{\bar{n}^n}{n!} = e^{-\bar{n}} \left(0 + 0 + 2 \frac{\bar{n}^2}{2!} + 6 \frac{\bar{n}^3}{3!} + \dots \right) \\
&= \bar{n}^2 e^{-\bar{n}} \left(1 + \bar{n} + \frac{\bar{n}^2}{2!} + \dots \right) \\
&= \bar{n}^2 \sum_{n=0}^{\infty} \frac{\bar{n}^n}{n!} e^{-\bar{n}} = \bar{n}^2 \sum_{n=0}^{\infty} P(n) = \bar{n}^2
\end{aligned} \tag{1.14}$$

combinando las ecuaciones 1.12, 1.13 y 1.14:

$$Var(n) = (\bar{n}^2 + \bar{n}) - \bar{n}^2 = \bar{n} \tag{1.15}$$

Por lo tanto, la varianza de una distribución de Poisson es igual al valor medio y su desviación estándar es igual a:

$$\begin{aligned}
\Delta n^2 &= \bar{n} \\
\Delta n &= \sqrt{\bar{n}}
\end{aligned} \tag{1.16}$$

Tomando como referencia la ecuación 1.16, el valor de la desviación estándar puede tener tres posibilidades, éstas son los tres tipos de luz que una fuente puede presentar según la distribución del número de sus fotones, y son las siguientes:

$$\begin{aligned}
&\text{Luz super Poissoniana : } \Delta n > \sqrt{\bar{n}} \\
&\text{Luz Poissoniana: } \Delta n = \sqrt{\bar{n}} \\
&\text{Luz sub Poissoniana: } \Delta n < \sqrt{\bar{n}}
\end{aligned} \tag{1.17}$$

La figura 1.2 muestra el comportamiento de los tres tipos de estadística de fotones para un promedio $\bar{n} = 100$ y un ejemplo de como se distribuyen los fotones en el tiempo (Hernández González, Caracterización de la correlación de fotones usando la densidad espectral de energías, 2011):

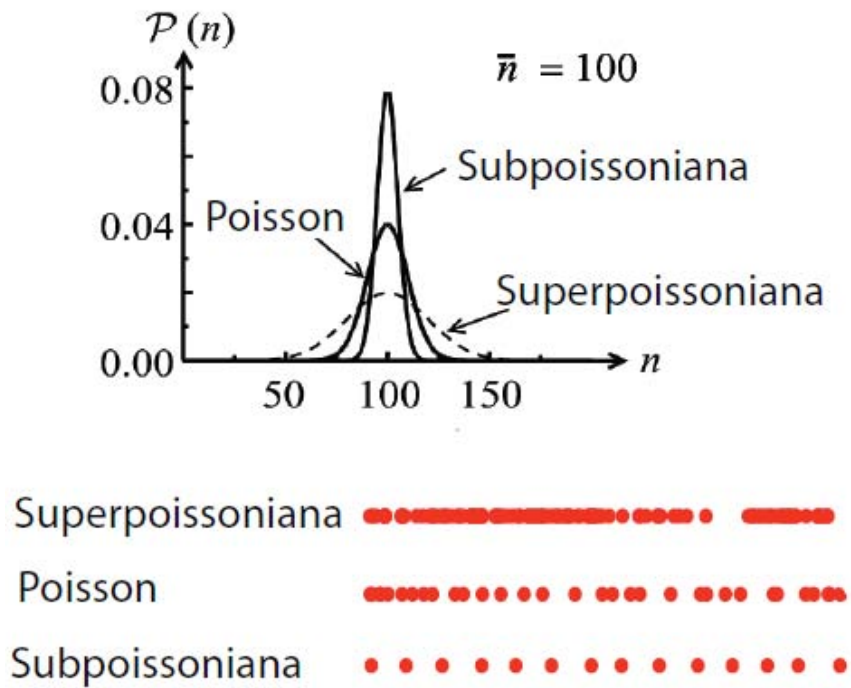


Figura 1.2. Comparación de las estadísticas de fotones para $\bar{n} = 100$.

1.1.2. Luz super-Poissoniana.

La luz super-Poissoniana se define por la ecuación:

$$\Delta n > \sqrt{\bar{n}} \quad (1.18)$$

Un ejemplo común de este tipo de fuente es la luz térmica, o radiación de cuerpo negro, cuya radiación electromagnética es producida por un cuerpo en función de su temperatura.

La estadística de la luz térmica presenta una distribución Bose Einstein y está dada por:

$$P_n = \frac{\bar{n}^n}{(1+\bar{n})^{n+1}} \quad (1.19)$$

donde $\bar{n} = \sum_{n=0}^{\infty} n P_w(n) = \frac{x}{1-x}$ es el promedio de fotones para un modo del campo y para este caso $\Delta n^2 = \bar{n} + \bar{n}^2$.

Las estadísticas de super-Poisson pueden ser relacionadas con agrupamiento de fotones (bunching), esto puede observarse si es medido en tiempos comparables a la longitud de coherencia de la fuente, lo cual se explicará más adelante. (Fox, 2006) (Hernández González, Caracterización de la correlación de fotones usando la densidad espectral de energías, 2011)

1.1.3. Luz sub-Poissoniana.

Al inicio de este capítulo se explicó que el tipo de luz que clásicamente es el más estable, y perfectamente coherente que puede tenerse, presenta estadística Poissoniana. En la Figura 1.2 puede verse que los fotones de esta estadística llegan aleatoriamente al detector, mientras que para la luz sub Poissoniana se distribuyen uniformemente, su pico es más corto que en la estadística Poissoniana y resulta ser una luz más coherente.

La luz sub Poissoniana no tiene equivalente clásico y es un ejemplo de la naturaleza cuántica de la luz (Fox, 2006).

Las fuentes con esta estadística emiten un número constante de fotones en un intervalo de tiempo constante (estados de Fock); para el caso ideal, la probabilidad de encontrar n fotones en un intervalo de tiempo Δt es una delta de Kronecker:

$$P_n = |\langle n|m \rangle|^2 = |\delta_{n,m}|^2 = \delta_{n,m} \quad (1.20)$$

donde $\Delta n^2 = 0$, sin embargo para una fuente real el número de fotones observados no es constante, pero se cumple la relación:

$$\Delta n^2 < \bar{n} \quad (1.21)$$

1.2. Correlación de segundo orden cuántica.

Con el descubrimiento del efecto fotoeléctrico, Einstein propuso que la luz está conformada de cuantos de energía fijos. Sin embargo, a pesar de que su postulado era correcto, el efecto fotoeléctrico sólo explicaba que la luz o la corriente eléctrica están cuantificadas. No fue sino hasta finales de 1970 que la existencia del fotón tuvo la demostración definitiva con el descubrimiento de fuentes de luz que emitían fotones individuales (fuentes de luz sub Poissonianas), dando origen a la óptica cuántica.

Debido a que no existen detectores que midan un fotón a la vez, se recurre a un método estadístico para demostrar que la fuente que se está estudiando es sub Poissoniana, este método utiliza la función de correlación de segundo orden, la cual se explica a continuación.

Clásicamente, la correlación de segundo orden se define como:

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\langle I(t)I(t+\tau) \rangle}{\langle I(t) \rangle \langle I(t+\tau) \rangle} \quad (1.22)$$

donde I es la intensidad de la luz. El término de segundo orden se refiere a que la correlación mide la intensidad de la luz, la cual es el cuadrado del campo eléctrico; a diferencia de la correlación de primer orden que se refiere a una medida directa del campo eléctrico.

Suponiendo que siempre se cumple que $\langle I(t) \rangle = \langle I(t + \tau) \rangle$, es decir, que el promedio de la intensidad de la luz se mantiene constante, y escribiendo la intensidad como la suma de su promedio y su desviación: $I(t) = \langle I \rangle + \Delta I(t)$, donde $\langle \Delta I(t) \rangle = 0$, tenemos que para una fuente de luz perfectamente coherente:

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\langle I_0^2 \rangle}{\langle I_0 \rangle^2} = \frac{I_0^2}{I_0^2} = 1 \quad (1.23)$$

debido a que $I(t) = I_0$.

Para una fuente de luz cuyos valores τ sean mucho más grandes que su tiempo de coherencia, $\tau \gg \tau_c$ (la escala de tiempo de las fluctuaciones de intensidad se determina por el tiempo de coherencia de la fuente τ_c), siempre se cumple que:

$$\begin{aligned} \langle I(t)I(t + \tau) \rangle &= \langle (\langle I \rangle + \Delta I(t))(\langle I \rangle + \Delta I(t + \tau)) \rangle \\ &= \langle \langle I \rangle^2 + \langle I \rangle \Delta I(t) + \langle I \rangle \Delta I(t + \tau) + \Delta I(t) \Delta I(t + \tau) \rangle \end{aligned} \quad (1.24)$$

Dado que para $\tau \gg \tau_c$, $\Delta I(t)$ y $\Delta I(t+\tau)$ no están correlacionadas entre sí, el producto de sus promedios es cero y que por definición $\langle \Delta I(t) \rangle = 0$, entonces:

$$\langle I(t)I(t + \tau) \rangle = \langle I \rangle^2 + 2\langle I \rangle \langle \Delta I(t) \rangle + \langle \Delta I(t) \Delta I(t + \tau) \rangle = \langle I \rangle^2 \quad (1.25)$$

Usando la definición de la ecuación 1.22, se obtiene que:

$$g^{(2)}(\tau \gg \tau_c) = \frac{\langle I(t) \rangle^2}{\langle I(t) \rangle^2} = 1 \quad (1.26)$$

Y para $\tau = 0$

$$g^{(2)}(0) = \frac{\langle I(t)^2 \rangle}{\langle I(t) \rangle^2} \quad (1.27)$$

Empleando la desigualdad de Cauchy-Schwartz:

$$(\sum_i a_i b_i)^2 \leq \sum_i a_i^2 \sum_i b_i^2 \quad (1.28)$$

A partir de las ecuaciones 1.25-1.27 se obtienen las siguientes igualdades:

$$\langle I(t)I(t + \tau) \rangle^2 \leq \langle I^2(t) \rangle^2 \quad (1.29)$$

$$g^{(2)}(\tau) \leq g^{(2)}(0) \quad (1.30)$$

En $\tau=0$ la desigualdad nos dice que la correlación es máxima, lo cual se interpreta como bunching o agrupamiento de fotones.

Usando la igualdad $\langle (I(t) - \langle I(t) \rangle)^2 \rangle \geq 0$ tenemos:

$$\langle I(t)^2 \rangle \geq \langle I(t) \rangle^2 \quad (1.31)$$

Por lo tanto para $\tau=0$

$$g^{(2)}(0) \geq 1 \quad (1.32)$$

La igualdad $g^2(0)=1$ nos dice que no hay correlación entre dos foto-detecciones simultáneas, es decir, que ambos son detectados casualmente (Beveratos, 2002) (Nilsson, 2009).

Para una fuente térmica, la correlación de segundo orden está dada de la forma:

$$g^{(2)}(\tau) = 1 + |g^{(1)}(\tau)|^2 \quad (1.33)$$

donde particularmente $g^{(2)}(0) = 2$.

Con el fin de incluir la naturaleza cuántica de la luz, y así dar una definición más completa, escribimos el campo eléctrico de la siguiente forma:

$$E(x) = E^{(+)}(x) + E^{(-)}(x) \quad (1.34)$$

Entonces la correlación de segundo orden queda definida ahora como:

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\langle E^{(-)}(t)E^{(-)}(t+\tau)E^{(+)}(t+\tau)E^{(+)}(t) \rangle}{\langle E^{(-)}(t)E^{(+)}(t) \rangle \langle E^{(-)}(t+\tau)E^{(+)}(t+\tau) \rangle} = \frac{\langle I(t)I(t+\tau) \rangle}{\langle I(t) \rangle \langle I(t+\tau) \rangle} \quad (1.35)$$

En este caso $E^{(+)}(t)$ y $E^{(+)}(t + \tau)$ no conmutan y ya no puede aplicarse la desigualdad de Cauchy Schwartz, entonces $g^2(0)$ puede cancelarse.

Si la onda es monomodal la expresión queda simplificada como:

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\langle a^+ a^+ a a \rangle}{\langle a^+ a \rangle^2} = \frac{\langle \hat{n}(\hat{n}-1) \rangle}{\langle \hat{n} \rangle^2} \quad (1.36)$$

donde $\hat{n} = a^+ a$ es el número de fotones.

Podemos escribir la probabilidad de detectar un fotón en el tiempo t y $t+\tau$ como la aniquilación de un fotón en esos instantes, pues la detección de un fotón corresponde a la aplicación del operador aniquilación $E^{(+)}$:

$$\begin{aligned} P(t, t + \tau) &= \varepsilon(t)\varepsilon(t + \tau) |E^+(t + \tau)E^+(t)|i|^2 \\ &= \varepsilon^2 \langle i | E^-(t)E^-(t + \tau)E^+(t + \tau)E^+(t) | i \rangle \end{aligned} \quad (1.37)$$

donde $\varepsilon(t) = \varepsilon(t + \tau) = \varepsilon$ es la eficiencia de detección.

Expresando la correlación de segundo orden en términos de las ecuaciones anteriores, la expresión queda como:

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{P(t, t+\tau)}{P(t)^2} = \frac{P(t+\tau|t)}{P(t)} \quad (1.38)$$

donde $P(t + \tau | t)$ es una coincidencia en el tiempo t y $t+\tau$, y $P(t)$ es la probabilidad de detectar un fotón en cualquier momento.

Para un emisor único (fuente sub-Poissoniana) en un sistema de dos niveles, la probabilidad de tener una coincidencia se rige por la evolución del estado excitado (con σ_g y σ_e las poblaciones del estado fundamental y excitado, respectivamente).

Para $t=0$ el sistema se queda en el estado fundamental, por lo tanto en el instante τ la probabilidad será $P(t + \tau | t) = P(\tau | 0) = \Gamma \sigma_e(\tau)$ con $\sigma_e(0) = 0$ y $\sigma_g(0) = 1$.

En este caso la probabilidad $P(t) = \Gamma \sigma_e(\infty)$, con $\sigma_e(\infty)$ como la población estacionaria. De acuerdo con esto, la correlación de segundo orden para un emisor único queda dada como:

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\sigma_e(\tau)}{\sigma_e(\infty)} = 1 - \exp(-(r + \Gamma)\tau) \quad (1.39)$$

con r la tasa de bombeo y Γ^{-1} el tiempo de vida. (Beveratos, 2002)

De la ecuación anterior se obtiene que:

$$\begin{aligned} g^{(2)}(0) &= 0 \\ g^{(2)}(0) &\leq g^{(2)}(\tau) \end{aligned} \quad (1.40)$$

por lo tanto:

$$g^{(2)}(0) < 1 \quad (1.41)$$

Esto es una violación de las ecuaciones 1.30 y 1.32 que se aplican a la luz clásica, por lo tanto, es un efecto puramente cuántico denominado antibunching, el cual es una anticorrelación (Beveratos, 2002) (Nilsson, 2009).

De acuerdo con este método estadístico, la luz queda clasificada en tres categorías:

Luz con agrupamiento de fotones (bunching): $g^{(2)}(0) > 1$

Luz coherente: $g^{(2)}(0) = 1$

Luz con anti-agrupamiento de fotones (antibunching): $g^{(2)}(0) < 1$ (1.42)

La Figura 1.3 muestra el comportamiento de la nueva clasificación de la luz obtenida a partir del valor de la correlación de segundo orden (Hernández González, 2011):

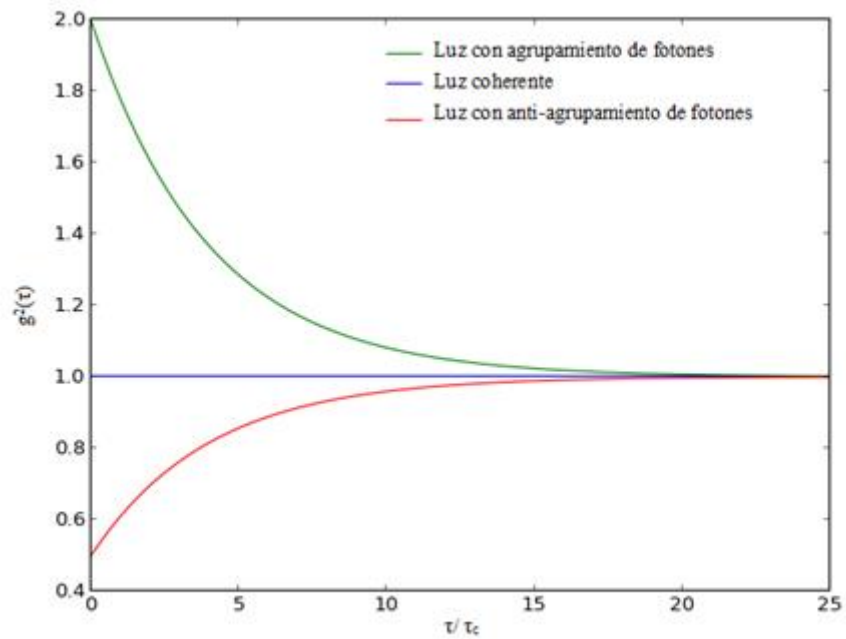


Figura 1.3. Correlación de segundo orden para las tres clasificaciones de luz.

1.3. Fuentes de Luz Antibunching.

Para producir un fotón a la vez se necesita excitar un sistema cuántico de dos niveles. A un electrón en este sistema le toma un tiempo finito excitarse, emitir y volver a excitarse antes de emitir un segundo fotón. Idealmente, una fuente de fotones individuales debe tener las siguientes características (Bissel, 2011):

- Tasa de repetición elevada: tiempo corto de vida del estado excitado.
- Eficiencia cuántica elevada: todos los pulsos de excitación deben ser transformados en fotones individuales.
- Emisión de fotones en un solo modo espacial con una polarización definida.
- Emitir un fotón único a la vez.
- Ser estable a temperatura ambiente.

El principio físico más simple para realizar una fuente de luz antibunching, o fuente de fotones individuales, es el de excitar un sistema con un láser pulsado, cuyo tiempo de vida de la emisión debe ser largo en comparación con la duración del pulso de excitación y corto comparado con el lapso de tiempo entre pulsos sucesivos.

El sistema de dos niveles inicialmente se encuentra en su estado base. Éste es llevado a un estado excitado por el pulso, donde permanecerá un cierto periodo de tiempo (el tiempo de vida del estado excitado).

Posteriormente decae a su estado original, emitiendo un solo fotón. El sistema permanecerá en su estado base hasta que un nuevo pulso lo excite.

Existen diversos sistemas con los cuales se pueden construir fuentes de fotones individuales: moléculas orgánicas, semiconductores, centros de color, por ejemplo.

Esta tesis está enfocada principalmente en los sistemas generados a partir de semiconductores, debido a su fotoestabilidad y tiempo de vida corto (el tiempo de vida de las muestras empleadas es de $25\mu\text{s}$ aproximadamente).

En estos sistemas, cada desexcitación de un par electrón hueco emite un fotón. Generalmente, cuando se excita un punto cuántico se inyectan varios pares dentro del punto cuántico, pero cada par emite un fotón en una longitud de onda distinta, por lo cual al utilizar un filtraje espectral se puede aislar la excitación de un solo par, lo que conlleva a obtener un solo fotón a la vez.

Capítulo 2. Plasmónica. Nanomateriales afectados por efectos de campo cercano.

El campo cercano puede definirse como la extensión del campo electromagnético existente en el interior de un material sobre su superficie, siendo el resultado de la variación continua de las amplitudes de campo y las energías a través de las interfaces. Existen diferentes tipos de campos cercanos y se clasifican en dos categorías, los producidos espontáneamente a causa de una influencia permanente en el material y los campos que sólo pueden ser producidos por una excitación externa (haces de fotones y electrones que inciden sobre la superficie).

En los últimos años, se ha desarrollado un gran interés en los efectos de campo cercano generados en nanoestructuras plasmónicas, tanto de manera teórica (estudios de la interacción radiación-materia en el plasmón de superficie, que en sí mismo es un tema de importancia actual) como en estudios experimentales que analizan los efectos del plasmón sobre diversos materiales.

Por definición, los plasmones superficiales son oscilaciones colectivas de los electrones que se encuentran en la superficie de un metal. El estudio de la interacción de la luz con dichas oscilaciones, que originan que los campos electromagnéticos en la superficie puedan ser confinados en dimensiones del orden $\leq \lambda$, ha llevado al desarrollo de un campo de investigación denominado Plasmónica. (Dena, 2013) (Zayats, Smolyaninov, & Maradudin, 2005) (Sotckman, 2011).

Este nuevo campo de investigación ha ocupado un lugar importante en el desarrollo científico, experimentos de conteo de fotones, interferencia de dos plasmones, conversiones antibunching-bunching, correlaciones mediante el experimento HBT, mejoras en propiedades de materiales que en bulto están ausentes, como el silicio, son algunos ejemplos de las investigaciones que actualmente se realizan (Tame, y otros, 2008) (Varró S., 2011) (Steel, 2014).

Debido a sus propiedades, el silicio en la actualidad se ha convertido en el material más importante para la microelectrónica. Esto gracias a una conductividad eléctrica que puede ser manipulada ampliamente, su estabilidad térmica y mecánica y la posibilidad de purificarlo (o impurificarlo) de manera controlada, así como su abundancia (Bornacelli Camargo, 2014) (Benami, et.al, 2012).

Sin embargo, una de las desventajas del silicio en bulto ha sido su ineficiencia para emitir luz, lo cual lo llevó a no ser considerado por mucho tiempo para aplicaciones optoelectrónicas, consecuencia de que su banda prohibida es indirecta (la recombinación radiativa de un par electrón-hueco no puede ocurrir a menos que una tercera partícula, fonón, esté involucrada en el proceso para que así el momento se conserve. Dado que la recombinación no radiativa tiene más probabilidad de ocurrir en comparación con este proceso, la emisión de luz es poco probable) (El-Kork, 2009).

Por otra parte, durante años recientes se ha demostrado que las estructuras de silicio de tamaño nanométrico, como el silicio poroso o los nanocristales de silicio (puntos cuánticos), ensamblados en matrices de SiO_2 , presentan un aumento significativo en esta eficiencia, cuyo rendimiento cuántico en la emisión de fotoluminiscencia (PL) llega a exceder el 50%.

La explicación acerca de la emisión de estos sistemas aún es tema de debate, pero una de las posibles causas podría deberse a que el confinamiento cuántico hace probable la combinación radiativa (Daniel C. Hannah, 2012).

Estas altas eficiencias han generado interés en su estudio para poder obtener dispositivos emisores de luz de este material, que eventualmente podrían crear una nueva generación de chips basados totalmente en silicio y ampliar la funcionalidad de la microelectrónica en optoelectrónica, así como la posibilidad de ser aplicado en nanomedicina.

Un método para aumentar aún más la eficiencia de emisión en el caso de nanocristales de silicio es el acoplamiento de nanopartículas metálicas (Benami, y otros, 2012) (Julie S. Biteen L. A., 2007) (Julie S. Biteen D. P., 2005).

En este capítulo se describe la teoría que explica los sistemas que se analizaron en esta tesis, se especificará su método de elaboración y se mostrarán sus características espectrales (absorción y fotoluminiscencia).

2.1. Puntos cuánticos de Si embebidos en una matriz de SiO₂.

El silicio es un material semiconductor, cuya conductividad eléctrica a temperatura ambiente es $10^{-3} \Omega^{-1}\text{m}^{-1}$, para entender sus propiedades ópticas se explica la teoría de bandas a continuación.

En todos los materiales aparecen estados no permitidos de energía denominados bandas prohibidas, excepto en los materiales conductores. Para un material aislante, la banda prohibida está situada entre su banda de valencia (banda llena de electrones) y la banda de conducción (la cual a T=0K está vacía).

Al aumentar la temperatura, los electrones ganan energía y pueden vencer la barrera energética de la banda prohibida y así trasladarse a la banda de conducción.

Un semiconductor se diferencia de un aislante por la magnitud de su banda prohibida, donde su valor oscila en 1eV, mientras que para un aislante puede ser de hasta 6eV. La banda prohibida del silicio en bulto tiene un valor de 1.11eV a temperatura ambiente. (Bornacelli Camargo, 2014). En la figura 2.1 se muestra un esquema de las bandas de energía en un material aislante y un semiconductor.

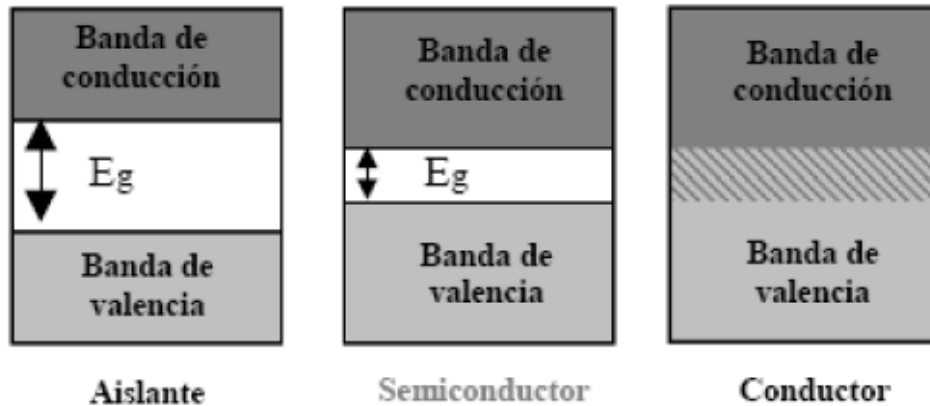


Figura 2.1. Bandas de energía de un material aislante y un material semiconductor.

En un semiconductor puro, la luz puede usarse para trasladar los electrones a la banda de conducción si la energía de los fotones es igual o mayor a la magnitud de la banda prohibida.

Al excitar el material, se crean pares de electrones-hueco y para mantener el equilibrio se establece una recombinación de electrones-hueco en el proceso. Esta recombinación puede ser radiativa o no radiativa.

El proceso que nos interesa es el radiativo (emisión de un fotón en la recombinación) o transición óptica, puede ser estimulado o espontáneo y puede ser de dos tipos: transición directa o indirecta.

Para conservar el momento, una transición está dada por:

$$k_p + k_c = k_v \quad (2.1)$$

Donde k_c y k_v son los vectores de onda del electrón en la banda de conducción y valencia, respectivamente, y k_p es el vector de onda del fotón emitido.

Como la magnitud del vector de onda de un fotón en el espectro visible es mucho menor que la magnitud del vector de onda de un electrón en un cristal, la relación anterior es:

$$k_c = k_v \quad (2.2)$$

Las transiciones que cumplen esta regla se denominan transiciones directas.

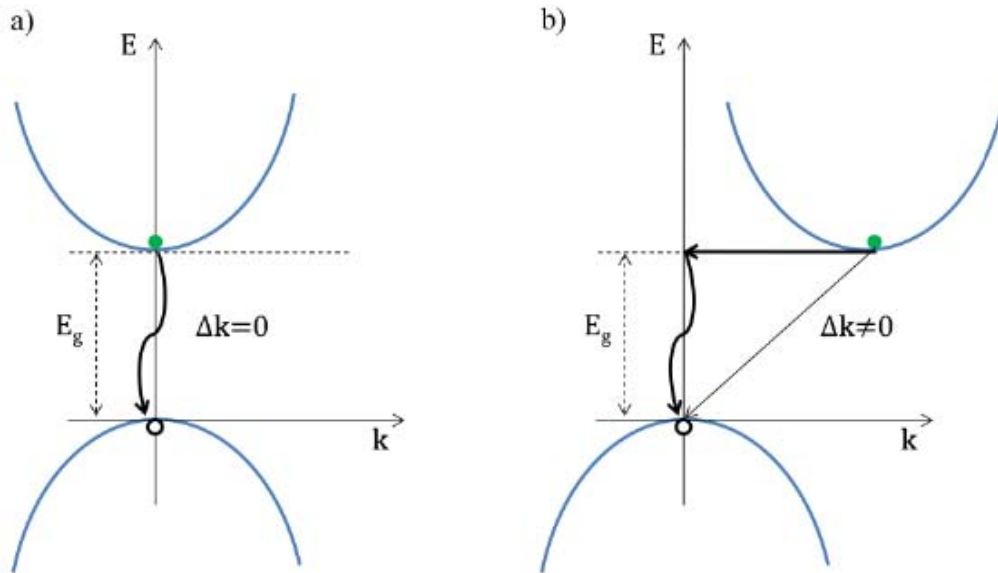


Figura 2.2 a) banda prohibida directa y b) banda prohibida indirecta.

El silicio es un semiconductor con banda prohibida indirecta (los vectores k_c y k_v son diferentes). Para que la recombinación exista, el proceso debe incluir la participación de una tercera partícula, fonón, para conservar el momento. Esta transición se denomina transición indirecta y es poco probable en comparación con la transición directa (Figura 2.2b).

La realización de nanocristales de Si como emisores de luz surgió a partir del descubrimiento de la emisión eficiente de luz en silicio poroso en 1990 (Canham, 1990) (A.G. Cullis, 1991). Esta eficiencia, y que la longitud de emisión dependa del tamaño del nanocristal, se deben al confinamiento cuántico.

El confinamiento cuántico se produce cuando una o más dimensiones del cristal de silicio son comparables con la longitud de onda de de Broglie de los electrones en la banda de conducción, lo que resulta en que el movimiento en esa dirección esté cuantizado. La clasificación del confinamiento cuántico depende de las dimensiones en las que el movimiento se encuentre confinado. Para una dimensión se denomina “pozo cuántico”, para dos “alambre cuántico” y para tres “punto cuántico”. En el caso del silicio, es posible poder obtener un punto cuántico, los electrones del semiconductor

se comportan como si estuviesen en un pozo de potencial tridimensional, si el tamaño del nanocrystal no sobrepasa los 10 nm (Yoffe, 1993).

El confinamiento cuántico aumenta la probabilidad de una recombinación radiativa en los nanocristales de silicio, debido a la superposición de la función de onda de electrones y huecos en el espacio de momentos, haciendo que la banda de los nanocristales sea cuasi directa, sin embargo, a comparación con los semiconductores de banda prohibida directa, los nanocristales de silicio tienen bajas tasas de emisión radiativa.

Debido a que los puntos cuánticos, presentan un sistema de dos niveles, cuyo tiempo entre cada emisión depende de su tiempo de vida, son considerados como fuentes de fotones individuales.

Para elaborar nanocristales de silicio han surgido varias técnicas, una de ellas, que es útil para aplicaciones fotónicas, es la implantación de iones, la cual destaca por permitir procesos compatibles con la tecnología CMOS (Complementary Metal Oxide Semiconductor), uno de ellos es la implantación en una matriz de SiO₂, material aislante por excelencia en la tecnología de Si (Bornacelli Camargo, 2014).

Se ha reportado que este método produce nanoestructuras de silicio de tamaños entre 3 a 5 nm después de una serie de recocidos a altas temperaturas y los nanocristales presentan un espectro de fotoluminiscencia centrado alrededor de 700 nm.

2.2. Emisores individuales acoplados a Plasmones de Superficie. Nanopartículas metálicas.

Los plasmones superficiales son los cuantos de las oscilaciones de la densidad de carga superficial en un metal. Debido a su naturaleza localizada, los plasmones de superficie se han utilizado principalmente como fuentes de luz localizada para aplicaciones en espectroscopia óptica y microscopía, el mejoramiento de la técnica Raman (SERS) es un ejemplo notable de la última aplicación y, recientemente, han sido utilizados en investigaciones en circuitos ópticos integrados (Darrick E. Chang, 2007) y guías de onda ópticas (A. V. Akimov, 2007).

Los plasmones pueden tomar diversas formas, una de ellas son las oscilaciones de electrones localizados en nanopartículas metálicas (Figura 2.3). Así, un plasmón de superficie es una onda electromagnética superficial, cuyo campo electromagnético está confinado a una vecindad cercana a la interfase.

Este confinamiento produce un aumento en el campo electromagnético en la interfase, el cual es responsable del aumento en la superficie de fenómenos ópticos como la fotoluminiscencia (R. Marty, 2010) (Dena, 2013).

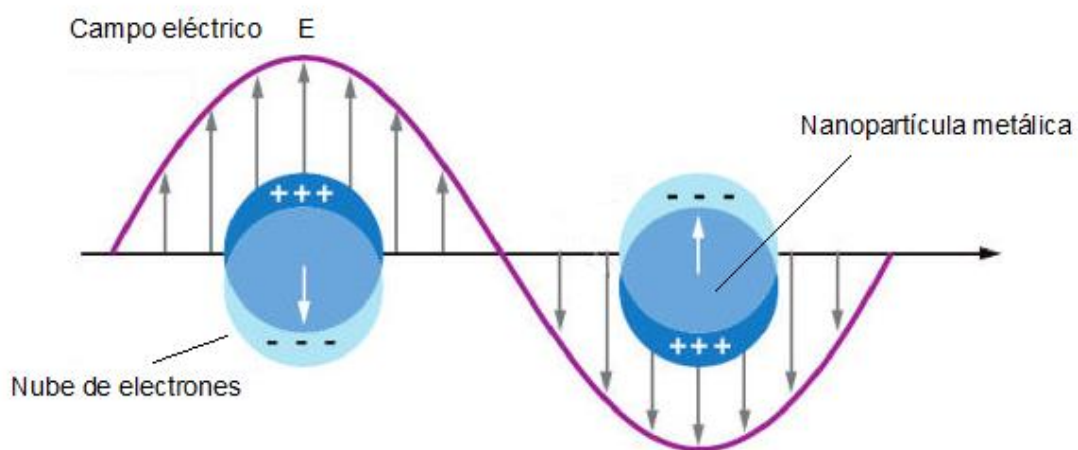


Figura 2.3. Oscilación de los electrones en nanopartículas metálicas debido a la radiación electromagnética incidente.

La frecuencia de las ondas electromagnéticas incidentes, para la cual las oscilaciones colectivas son máximas (máxima absorción y dispersión de las nanopartículas metálicas), se le denomina frecuencia de resonancia del plasmón de superficie.

Para el caso de nanopartículas esféricas de Ag, su resonancia del plasmón se localiza alrededor de 400 nm. Este pico se desplaza un poco hacia longitudes de onda mayores cuando el radio del nano-cúmulo aumenta. En la figura 2.4 se muestran las eficiencias de absorción y dispersión, como función de la longitud de onda incidente, para una nanopartícula de Ag en el vacío (Bornacelli Camargo, 2014).

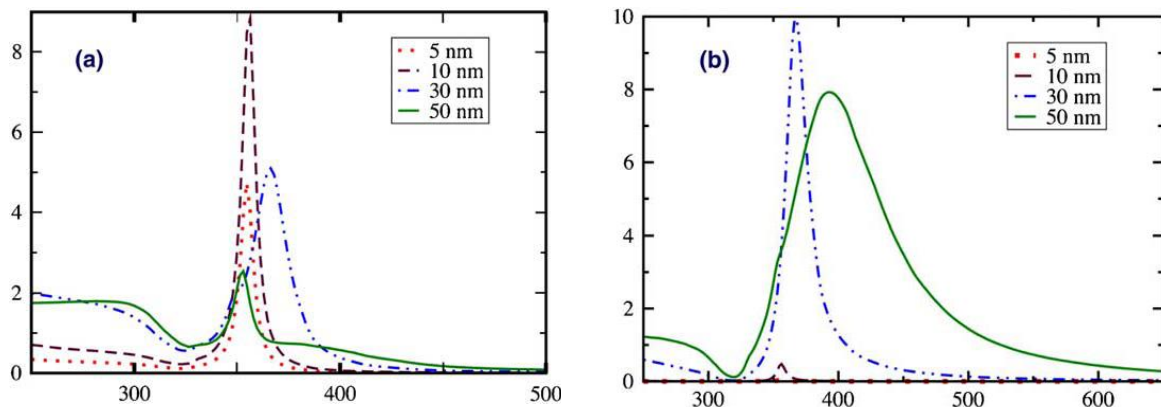


Figura 2.4 Eficiencias de a) absorción y b) dispersión para una NP de Ag en el vacío.

En general, es posible observar un valor pico alrededor de 355nm que corresponde al valor de la longitud de onda incidente, donde los efectos de absorción y dispersión son máximos.

La primera evidencia de aumento de la fotoluminiscencia de puntos cuánticos de silicio acoplados a nanoestructuras metálicas (Au) fue observada por Biteen et al. (Julie S. Biteen D. P., 2005). Debido a que el aumento en la fotoluminiscencia es más efectivo para longitudes de excitación láser cercanas al valor de la resonancia del plasmón de superficie de las nanoestructuras metálicas, los puntos cuánticos de silicio se excitaron con luz láser de 488 nm, pues la resonancia del plasmón de superficie de las nanoesferas de oro está alrededor de 520 nm.

Se observó que la fotoluminiscencia de la muestra acoplada aumenta en un factor de cinco y que el aumento de la fotoluminiscencia depende de la distancia entre los puntos cuánticos a las nanoestructuras metálicas. Explicaron que el aumento en la fotoluminiscencia podía ser debido a que las nanopartículas de oro producen fuertes campos eléctricos locales, lo cual aumenta la tasa de decaimiento del punto cuántico y, por lo tanto, su luminiscencia.

En un arreglo de puntos cuánticos de silicio con implantaciones de nanopartículas de Ag realizado por Mertens et al. (Hans Mertens, 2006), se observó que la luz emitida está polarizada en la misma dirección que la extinción (absorción+dispersión) de las nanopartículas de Ag. Según los autores, el aumento de la fotoluminiscencia y su polarización se debe al acoplamiento electromagnético de la emisión de los puntos cuánticos de Si con el modo de plasmón en las nanopartículas de plata. La correspondencia entre la polarización emitida y la extinción (absorción+dispersión) de las nanopartículas de Ag a la misma longitud de emisión de los puntos cuánticos de silicio, sugiere que el aumento de la fluorescencia no se debe a un aumento en las tasas de excitación de los puntos cuánticos de silicio debido al plasmón de las nanopartículas metálicas.

Muchas de las aplicaciones de las propiedades de los plasmones de superficie, en particular las relacionadas con la información cuántica, requieren un profundo conocimiento de sus propiedades cuánticas fundamentales. Por ejemplo, estos estados conservan muchas de las propiedades cuánticas de los fotones utilizados para excitarlos, como el enredamiento cuántico y la estadística antibunching (Fakonas, 2015) (A. González-Tudela, 2013).

Para el caso de la conservación de antibunching, es notable que a pesar de que un plasmón de superficie implica un gran número de electrones, éste se comporta como una sola partícula cuántica.

2.3. Espectros de absorción y fotoluminiscencia (emisión y excitación).

Las muestras estudiadas en esta tesis fueron preparadas por L. Tamayo-Rivera et al. (L. Tamayo-Rivera, 2011) mediante la técnica de implantación de iones, empleando el acelerador Tandem NEC 9SDH-2 Pelletron del Instituto de Física de la UNAM.

Una matriz de SiO₂ (20×20×1mm) fue implantada con iones de silicio 1.5 MeV a una fluencia de 2.5×10^{17} iones / cm². Una vez implantada, la muestra se cortó en dos pedazos y ambos fueron recocidos térmicamente en una atmósfera reductora (50% N₂ y 50% H₂) durante 1 hora a 1100 ° C, con el fin de producir nanocristales de silicio en el SiO₂ de tamaño entre 3 a 5nm. Después, solamente a una de estas dos piezas le fueron implantados iones de plata a una energía de 1.0 MeV, con una fluencia de 9.47×10^{16} iones / cm² y luego fue recocida en una atmósfera reductora a 600°C durante 1 hora.

El resultado después del segundo tratamiento térmico es un nano-compuesto que contiene una capa de puntos cuánticos de silicio y otra de nanopartículas de plata (esféricas) a diferentes profundidades en la matriz. Una tercera muestra se preparó mediante la implantación de iones de plata (sólo 9.47×10^{16} iones / cm² a 1 MeV de energía) en una pieza de SiO₂ de alta calidad, seguido de un tratamiento térmico de 1 hora a 600 ° C en atmósfera reductora, con el fin de formar nanopartículas de plata, también esféricas, en la muestra.

Con esto se obtuvieron tres muestras, una con nanocristales de silicio, otra con nanopartículas de plata y una con nanocristales de silicio y nanopartículas de plata.

La distribución del material implantado fue realizada mediante una simulación con el programa SRIM bajo las condiciones de implantación antes mencionadas. Se tomó la figura 2.5 de la referencia (L. Tamayo-Rivera, 2011) para mostrar las distribuciones de la simulación.

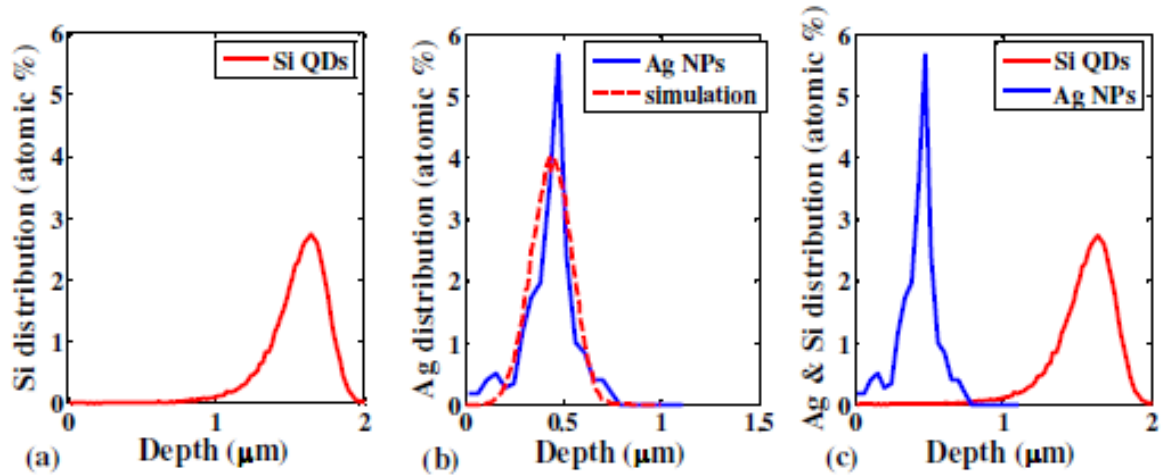


Figura 2.5 Simulación SRIM de implantación de iones de Ag y Si en SiO₂.

La simulación muestra que la máxima distribución de los nanocristales de silicio se encuentra a una profundidad aproximada de 1.65 μm debajo de la superficie de la matriz de sílice, con 0.9 μm de espesor de capa, figura 2.5 (a). Las nanopartículas de plata en la matriz muestran su concentración máxima en 0.48 μm de profundidad, con 0.75 μm de espesor, figura 2.5 (b). La figura 2.5 (c) muestra las profundidades correspondientes la muestra con ambas implantaciones.

Las mediciones de absorción óptica se realizaron con un equipo Varian Cary 5000. En la Figura 2.6 se muestran los espectros de absorción de las muestras con nanocristales de Si (muestra Si), nanocristales de Si con nanopartículas de Ag (muestra SiAg) y nanopartículas de Ag (muestra Ag). El pico que presentan las muestras Si y SiAg se debe a la resonancia del plasmón de superficie de la plata el cual se ubica alrededor de 400nm. La muestra Si no presenta efectos plasmónicos.

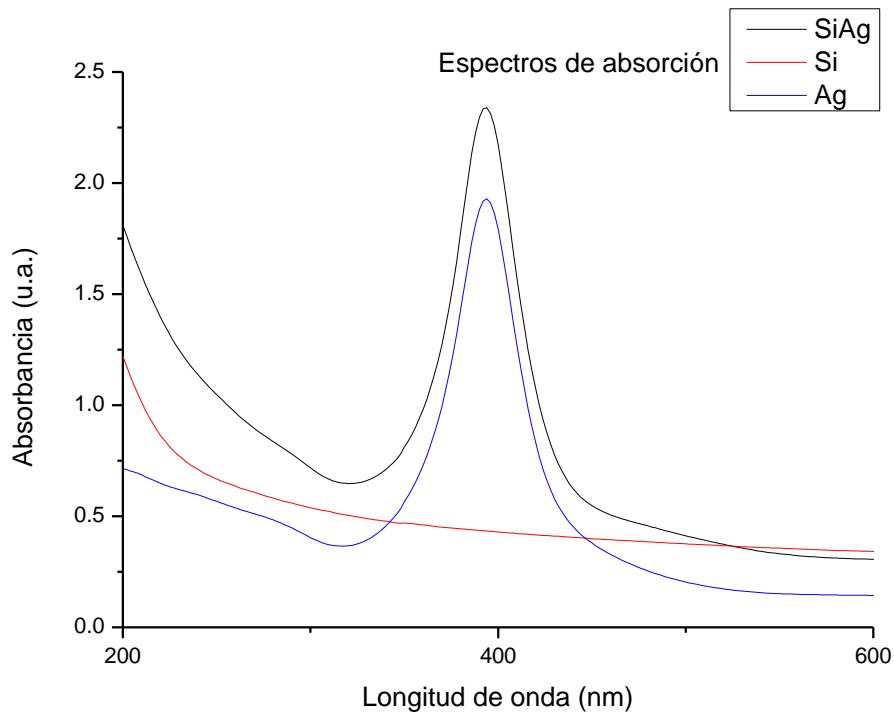


Figura 2.6. Espectros de absorción para las muestras implantadas en matrices de SiO₂. En color negro: nanocristales de silicio con nanopartículas de plata (SiAg), en color rojo: nanocristales de silicio (Si) y en azul: nanopartículas de plata (Ag).

Cuando una partícula es excitada por la absorción de uno o más fotones, puede volver a su estado fundamental a través de varios procesos, uno de ellos es la fotoluminiscencia (emisión de radiación electromagnética). El origen de este proceso en los nanocristales de silicio aún es tema de debate, sin embargo sus características son bien conocidas, su ancho de banda está entre 600-900 nm y como se mencionó en la sección anterior, depende del tamaño del nanocristal.

Para obtener los espectros de fotoluminiscencia, las muestras se colocaron en un soporte con el fin de que ésta formara un ángulo de 45° con la luz incidente (luz láser a través de un OPG) y la luz emitida fue recolectada por un espectrómetro Ocean Optics USB2000+ a través de una fibra óptica. Se eligió registrar todo el espectro de longitudes de onda emitida por las muestras, variando la longitud de excitación, con el fin de obtener la mejor longitud de onda de excitación para las muestras.

Mediante el tercer armónico (355nm) de un láser pulsado Nd:YAG, con pulsos de 26 picosegundos de duración y una frecuencia de 10 Hz (PL2143 de EKSPLA), se bombeó para su funcionamiento un OPG (Oscilator Generator Parametric, PG401 de EKSPLA) el cual permite hacer un barrido de longitudes de excitación de 210 - 340 nm, 370-419.9 nm, 420-680 nm y 740-2300 nm. Para este caso se hizo un barrido de 250 nm-630nm.

Los espectros mostraron que las nanopartículas de plata amplifican la fotoluminiscencia de los puntos cuánticos de silicio. Para todo el barrido, se encontró que la fotoluminiscencia de las muestras se presenta entre los 700-800 nm y que es óptima para la región de excitación entre 300-410 nm.

A continuación se muestran las gráficas obtenidas para las muestras de nanocristales de Si (Si) y nanocristales de Si con nanopartículas de Ag (SiAg) para el rango con mayor emisión, donde puede verse la amplificación de las nanopartículas de plata.

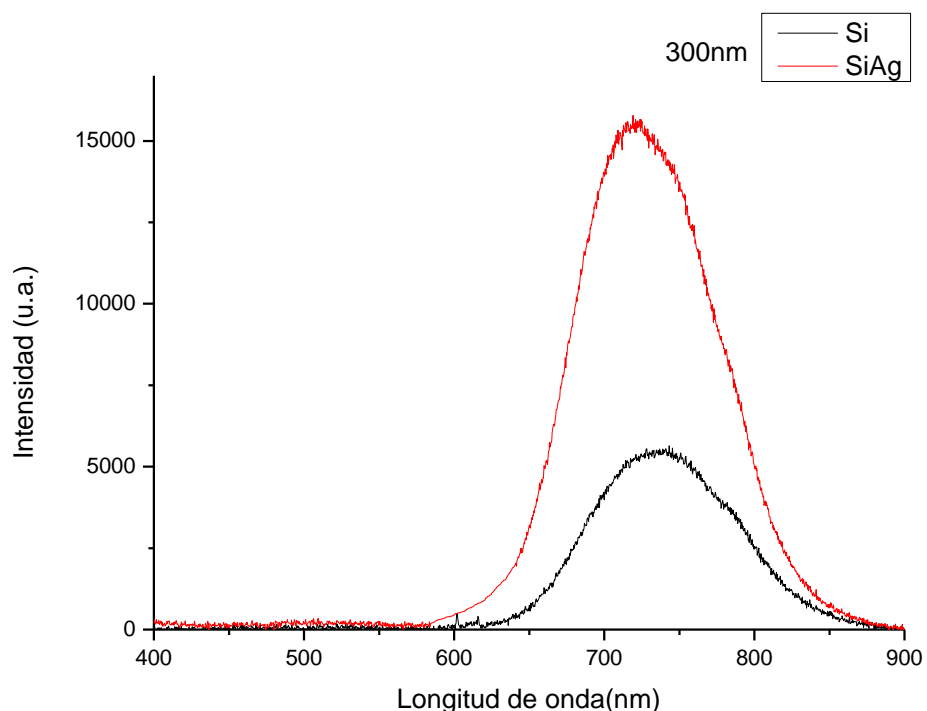


Figura 2.7. Espectro de fotoluminiscencia para una excitación láser de 300 nm.

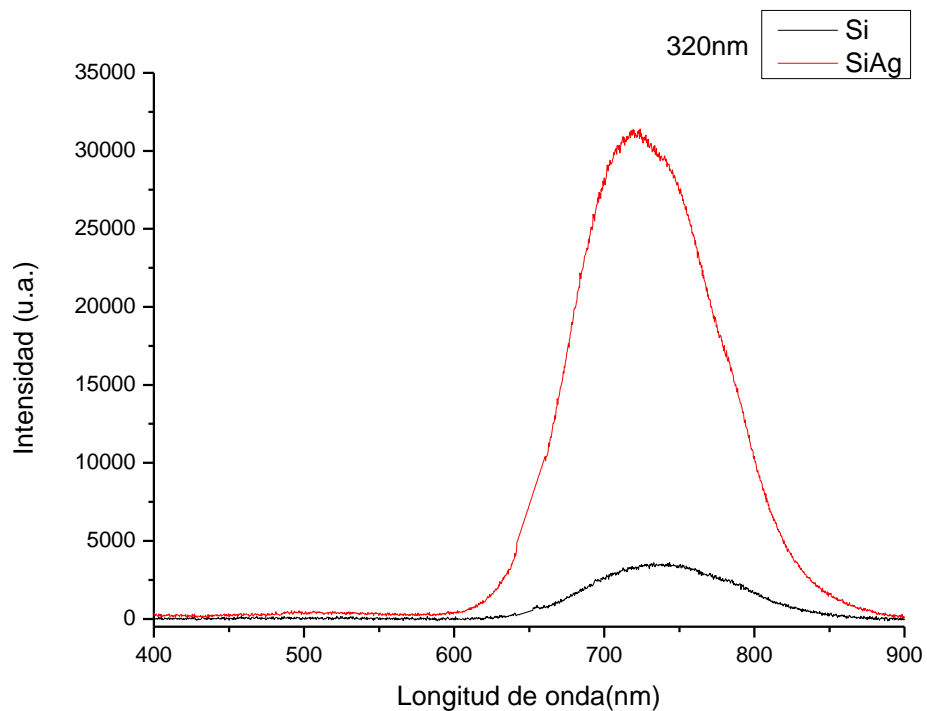


Figura 2.8. Espectro de fotoluminiscencia para una excitación láser de 320 nm.

Por razones de estabilidad con la alineación y la energía del microscopio confocal, se eligió inicialmente como haz incidente para las muestras la longitud de onda 355 nm, ya que esta longitud permite usar el tercer armónico del láser Nd:YAG, el cual es más estable que las líneas láser del OPG.

La Figura 2.9 muestra la comparativa de los espectros de fotoluminiscencia para las muestras Si y SiAg para 355 nm.

Debido a que no se obtuvieron correlaciones con la línea láser 355 nm, se hicieron las correlaciones con una longitud de excitación de 405 nm mediante un láser de diodo; la Figura 2.10 muestra los espectros de fotoluminiscencia para las muestras Si y SiAg con 405nm.

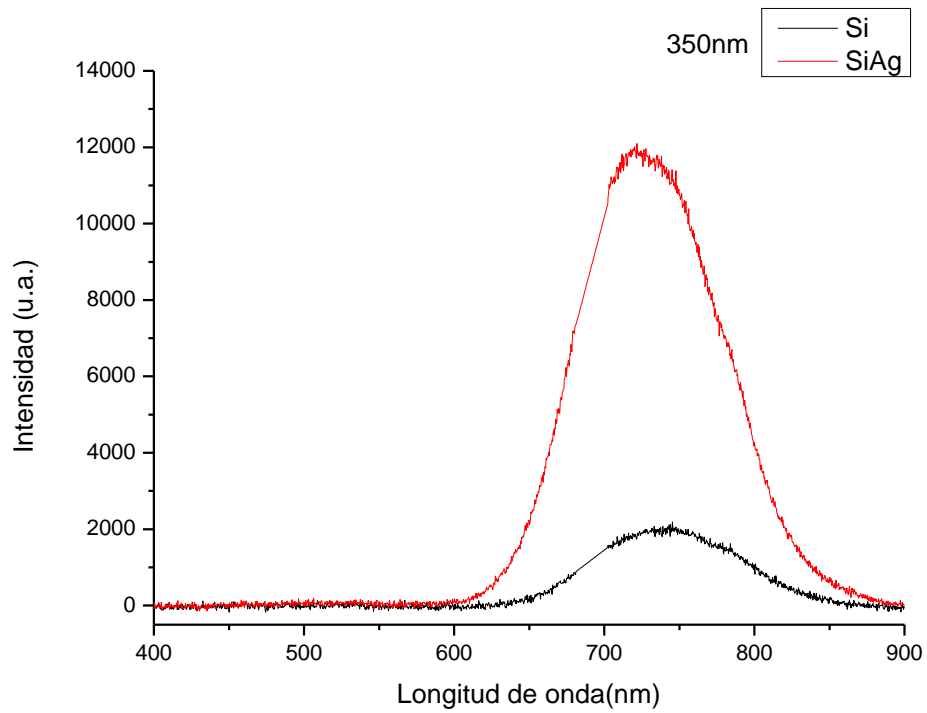


Figura 2.9. Espectro de fotoluminiscencia para una excitación láser de 355nm.

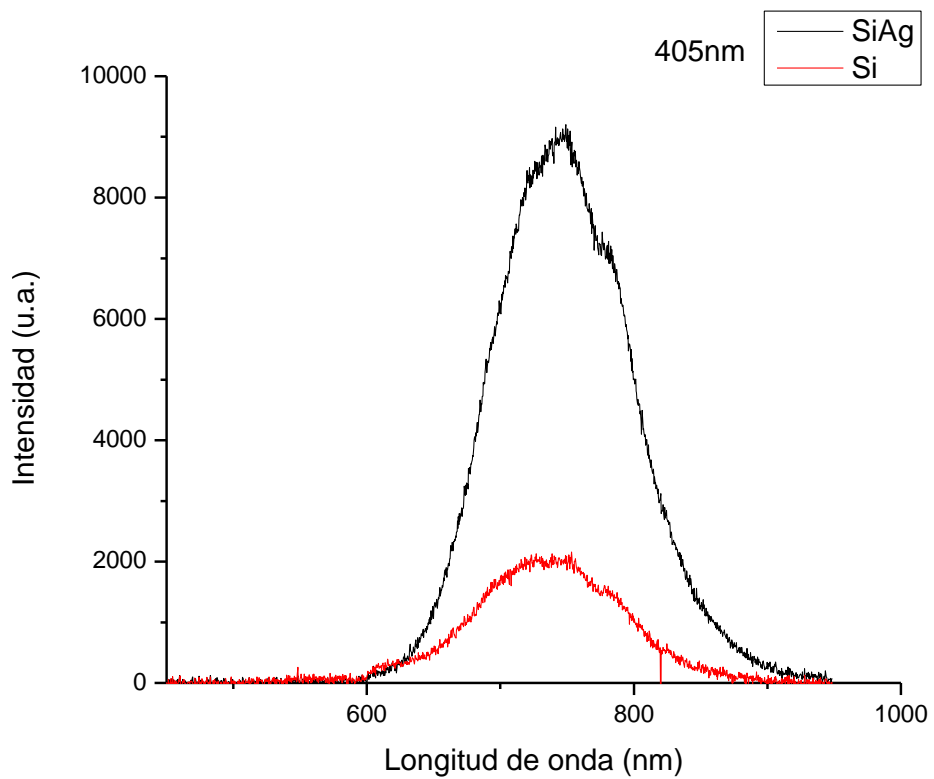


Figura 2.10. Espectros de fotoluminiscencia de las muestras Si y SiAg para 405nm.

Capítulo 3. Medición de la estadística de emisión.

Las fuentes de fotones individuales se consideran un elemento clave de los nuevos dispositivos fotónicos y pueden encontrar sus implementaciones en el procesamiento cuántico de información, incluyendo la computación cuántica y criptografía cuántica. Además, este tipo de fuentes nos permiten estudiar experimentalmente aspectos fundamentales de la mecánica cuántica que se explicarán a continuación.

Como se comentó en el capítulo 1, es difícil saber si se ha creado una fuente cuántica (fuente de fotones individuales), sin embargo, esto puede comprobarse a través de un interferómetro de Hanbury-Brown y Twiss (HBT).

En esta sección se describirá el funcionamiento del interferómetro HBT y de un microscopio confocal, cuyo acoplamiento a este interferómetro nos permite estudiar fuentes de fotones individuales en estructuras a escalas nanométricas.

3.1. Microscopio confocal.

La microscopía confocal se introdujo por primera vez por Marvin Minsky en 1957 (Patente nº US3013467 A, 1957). Se basa en la idea de excluir, mediante pinholes, la mayor parte de luz que esté fuera del plano focal del microscopio. El punto focal de la lente del objetivo (o punto de muestra) forma una imagen cuya pantalla es un pinhole, de esto se deriva la palabra “confocal”, pues el pinhole es conjugado del punto focal de la lente, Figura 3.1.

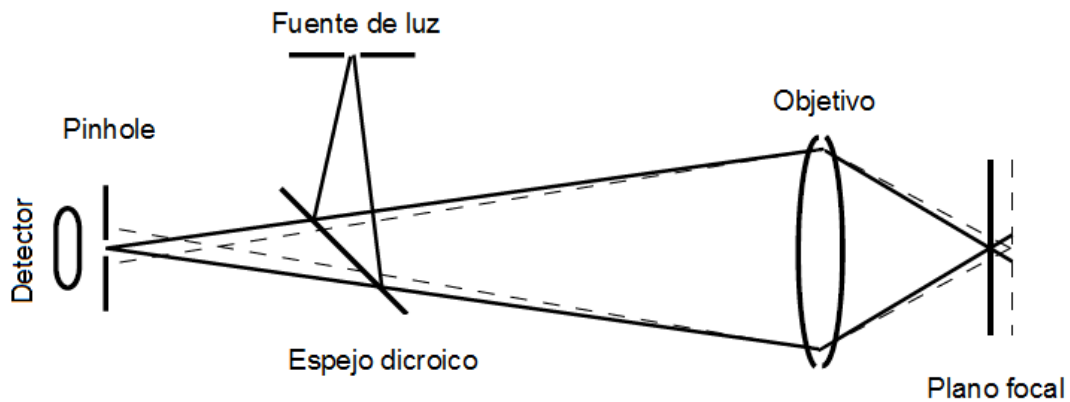


Figura 3.1. Funcionamiento del efecto confocal: La luz que está fuera del plano focal queda obstruida por el pinhole.

Poder observar la luz de un pequeño volumen aislado, generó una ventaja en comparación con los microscopios convencionales, ya que el microscopio confocal proporciona una gran señal contra ruido y una buena resolución espacial.

Por esta razón, se ha convertido en una técnica común de la investigación de los procesos biológicos a nivel celular, investigación en fotoluminiscencia y antibunching.

El principio de su funcionamiento consiste en hacer incidir luz sobre un espejo dicroico mediante una fuente puntual hacia un objetivo de microscopio, el cual enfoca la muestra a estudiar. La luz emitida por la muestra es enviada por el mismo camino óptico al espejo dicroico, la luz atraviesa el espejo (quedando filtrada la luz de la fuente puntual) y atraviesa un diafragma que actúa como filtro espacial, eliminando toda la luz que esté fuera de foco. La luz es recolectada por un detector que registra su intensidad luminosa. El microscopio confocal puede obtener resolución en el eje z, permitiendo reconstruir imágenes en 3D.

En la Figura 3.2 se muestra el montaje experimental del microscopio confocal hecho para esta tesis.

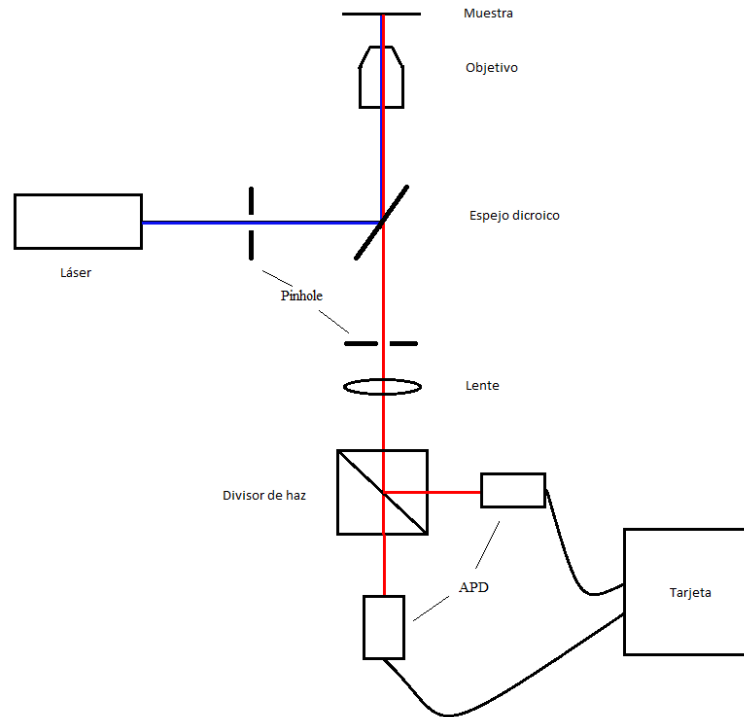


Figura 3.2 Microscopio confocal construido en el Laboratorio Óptica de Superficies del IF-UNAM y en el Laboratorio de Óptica Avanzada en la Facultad de Ciencias-UNAM. La explicación sobre la colocación del divisor de haz será explicada más adelante.

3.1.1. Importancia del pinhole.

El poder de resolución es una característica principal de un microscopio óptico, la profundidad de campo de un microscopio permite una observación en el orden de hasta $\lambda / 10$. Para la resolución lateral, las condiciones son distintas debido a la difracción de la luz, aún para el mejor microscopio óptico la imagen de un punto no resulta ser puntual sino será visto como un disco de Airy. La dimensión de éste limita la resolución de los microscopios ópticos, establece la escala para que los detalles se puedan resolver en una imagen confocal, y está determinada por la apertura numérica del objetivo de microscopio y la longitud de onda de excitación.

El concepto de límite de la resolución lateral fue introducido por Ernest Abbe y Lord Rayleigh a finales del siglo XIX. Para una luz de excitación proveniente de un láser (distribución Gaussiana) y suponiendo que ésta llena completamente la lente del objetivo, el límite de la resolución lateral, o diámetro del disco de Airy, está dado por (Hernández González , Generación de centros de color NV en nanopartículas de diamante para la emisión de estados no clásicos de luz, 2008):

$$d_{Airy} = \frac{1.22 \lambda}{NA} \quad (3.1)$$

donde NA es la apertura numérica del objetivo de microscopio y λ es la longitud de onda de excitación. El valor obtenido de la ecuación 3.1 establece una unidad Airy o 1UA, Figura 3.3.

A su vez, la resolución axial está dada por la siguiente expresión:

$$z = \frac{2\lambda\eta}{(NA)^2} \quad (3.2)$$

donde η es el índice de refracción del medio del objeto.

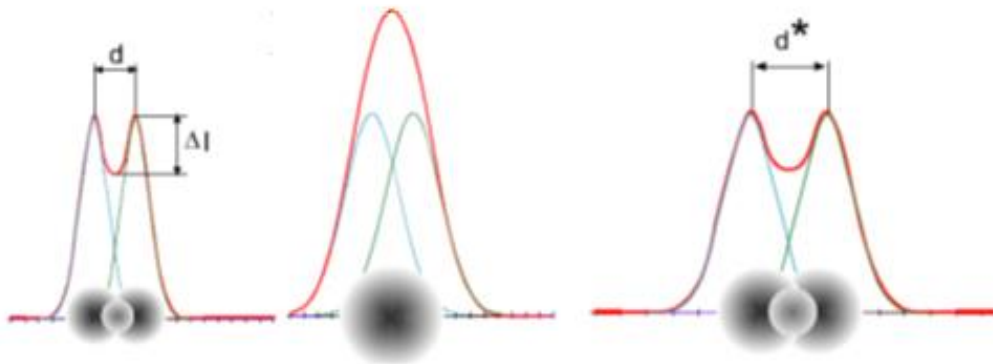


Figura 3.3. La resolución lateral está limitada por el tamaño de los discos de Airy. A la izquierda puede verse que el tamaño del diámetro, d , del disco puede resolver bien los detalles de la estructura. A la derecha puede verse que el tamaño del disco, d^* , permite ver la estructura pero que es demasiado grande para resolver los detalles. El caso de en medio es distinto, la estructura no puede ser resuelta debido a que los detalles en la estructura están muy próximos entre sí (menores al tamaño del disco de Airy).

Debido a que las características del microscopio confocal permiten hacer observaciones en tres dimensiones, para muestras transparentes es posible elegir una o varias capas de ésta (si las capas no bloquean la luz para poder observar las capas más profundas) para poder hacer escaneos tridimensionales de la imagen que envía la muestra. En el caso de muestras no transparentes, las capas externas pueden ayudar a modelar la topología tridimensional de la muestra observada, sin embargo, sin información del interior de ella.

3.2. Interferómetro HBT.

Antes de la década de 1950, el concepto de coherencia se limitaba a los fenómenos asociados a la interferencia de los campos electromagnéticos. Sin embargo, en 1956, Robert Hanbury Brown y Richard Twiss demostraron que existen efectos de coherencia al correlacionar la intensidad de la luz, esto lo hicieron a través del interferómetro Hanbury Brown and Twiss (HBT), el cual surgió como alternativa al interferómetro de Michelson estelar para medir el diámetro angular aparente de una estrella, ya que este solamente podía resolver el valor del ángulo para estrellas muy brillantes o grandes. Puesto que las estrellas desde la Tierra se ven prácticamente puntuales, no es factible hacer una medición directa, sin embargo, al medir la coherencia transversal (coherencia espacial) de la luz de la estrella es posible deducir su diámetro angular.

A continuación se explicará brevemente el concepto de coherencia para pasar a la explicación del interferómetro HBT, cuya relación con la obtención de la función de correlación de segundo orden para obtener la estadística de fuentes de fotones individuales es parte esencial de los objetivos de esta tesis.

3.2.1. Coherencia.

La coherencia es un concepto que cuantifica el grado de correlación entre dos o más fuentes de luz. Existen dos tipos de coherencia:

- Coherencia longitudinal: Es la coherencia a lo largo de la dirección de propagación, también es llamada coherencia temporal. Está definida por el tiempo coherencia t_c :

$$t_c = \frac{1}{\Delta\omega} \quad (3.3)$$

Donde $\Delta\omega$ es el ancho espectral de la luz. El tiempo de coherencia nos da la duración de tiempo en el que la fase del tren de ondas se mantiene estable. Si $\Delta\omega = 0$ significa que se tiene una fuente de luz con un infinito tiempo de coherencia (coherencia perfecta). Para la luz blanca emitida por una fuente térmica, por ejemplo, su tiempo de coherencia es muy corto.

- Coherencia transversal: Para el caso de una fuente monocromática, es una medida para la propagación de los vectores de onda (colimación) Δk de la fuente. Se cuantifica a través de la longitud de coherencia transversal l_c :

$$l_c = \frac{2\pi}{\Delta k} = \frac{\lambda}{\Delta\theta} \quad (3.4)$$

Donde $\Delta\theta$ es la dispersión angular y λ la longitud de onda de la fuente.

La luz de una fuente puntual no tiene dispersión angular y por lo tanto tiene perfecta coherencia espacial. Una fuente extendida, por otra parte, entrega la luz dentro de un rango angular finito y por lo tanto produce coherencia espacial parcial (Nilsson, 2009).

3.2.2. Principio del interferómetro HBT.

La definición de coherencia anterior al interferómetro HBT se basaba en si se podía obtener un patrón de interferencia. Por ejemplo, la coherencia temporal para una fuente se mide fácilmente como la longitud de retardo en un interferómetro de Michelson que puede ser observada mediante franjas de interferencia.

Para el caso de la coherencia transversal, se puede medir usando el experimento de la doble rendija de Young, la cual es la separación entre las rendijas donde el patrón de interferencia desaparece.

Ambos experimentos demuestran la interferencia de los campos electromagnéticos y que, actualmente, pueden describirse por la función de correlación de primer orden.

La obtención de un patrón de interferencia fue el principal problema que tuvo el interferómetro de Michelson estelar, Figura 3.4(a). El experimento consistía en enviar la luz recolectada de la estrella a dos espejos, separados a una distancia que era variable, los haces eran proyectados a una pantalla y se estudiaban los patrones de interferencia formados. Esto permitía obtener el tamaño angular de la estrella de acuerdo con la ecuación de coherencia transversal.

Si la luz recogida por los dos espejos era coherente, entonces se formaba un patrón de interferencia, si la luz era incoherente no se obtenía ningún patrón y, además, si se requería separar los detectores distancias grandes para recolectar la luz, se hacía muy difícil obtener las franjas de interferencia.

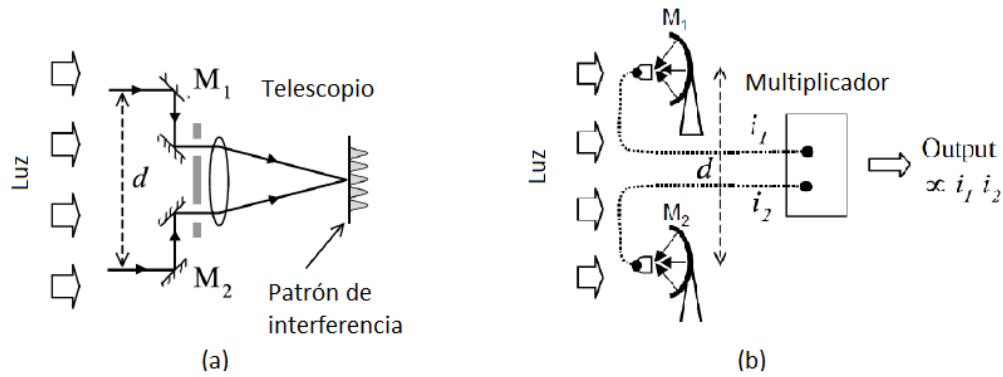


Figura 3.4 (a) El interferómetro Michelson estelar colectaba la luz a través de dos espejos y producía un patrón de interferencia que era proyectado en una pantalla. (b) El interferómetro HBT estelar recolectaba la luz mediante detectores separados (fotomultiplicadores) y era correlacionada a través de un contador electrónico.

Robert Hanbury Brown y Richard Twiss observaron coherencia temporal y transversal correspondiente a la función de coherencia de segundo orden, o función de correlación de segundo orden, mediante su interferómetro de intensidad. El dispositivo original midió la correlación transversal al igual que el interferómetro Michelson estelar y es llamado interferómetro HBT estelar, Figura 3.4(b).

La diferencia con el interferómetro Michelson estelar fue que la recolección de luz la hicieron con detectores independientes (fotomultiplicadores), separados a una distancia conocida, la señal recolectada fue enviada electrónicamente a un contador que midió la correlación de intensidad entre las señales, determinando el diámetro angular de la estrella.

No se discutirá como se obtuvieron los diámetros angulares, pues lo que es interesante para los objetivos de esta tesis es el interferómetro HBT que mide la correlación temporal para fotones y que se explica a continuación.

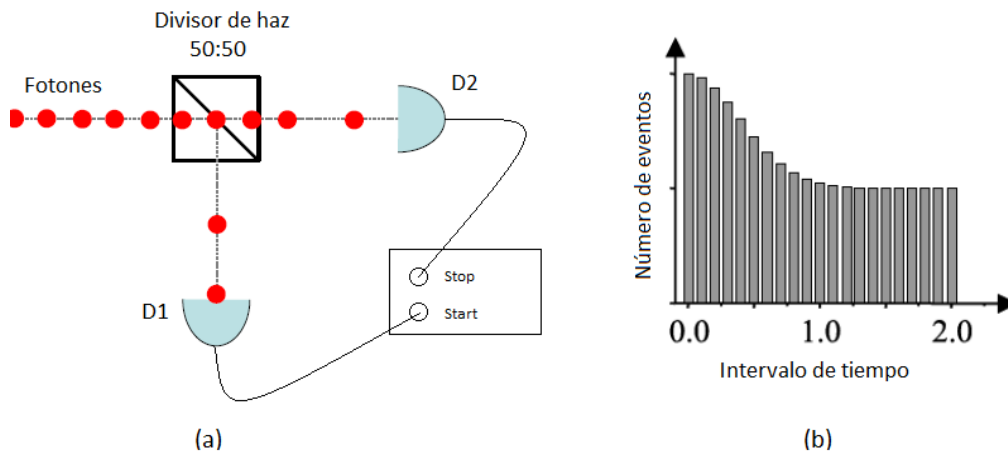


Figura 3.5. (a) Interferómetro HBT para medir la correlación de fotones. (b) Histograma de eventos.

Cuando Robert Hanbury Brown y Richard Twiss propusieron por primera vez que las fluctuaciones de intensidad de luz medida en dos lugares diferentes llevan información sobre el tamaño de la fuente de luz, se encontraron con una fuerte oposición, pues los científicos cuestionaron cómo dos fotones emitidos por dos átomos de una estrella lejana detectados en lugares distintos estaban correlacionados. Estas dudas condujeron a la investigación de la relación entre la coherencia y la naturaleza cuántica de la luz, originando el nacimiento de la óptica cuántica; y fue hasta 1970 que se demostraron los efectos cuánticos de HBT, pues en los experimentos originales aún no existían detectores con altas eficiencias cuánticas para revelar dichos fenómenos.

La figura 3.5 (a) muestra un esquema del interferómetro HBT para medir la correlación temporal de fotones. La luz de la fuente incide sobre un divisor de haz 50:50, lo que significa que el haz es separado en dos partes iguales entre los dos puertos de salida, ambos haces son enviados a un contador de fotones donde a uno de ellos se le da un retraso temporal.

El contador registra electrónicamente el intervalo de tiempo entre una detección del detector D1 (inicio) y una detección del detector D2 (stop), así como hace el conteo de

eventos para cada detector por separado y se hace un histograma que muestra los eventos como función del tiempo entre los fotones τ , figura 3.5 (b).

Dado que el número de cuentas registradas en un detector de fotones es proporcional a la intensidad, se puede usar la función de correlación de segundo orden ($g^{(1)}(\tau)$ cuantifica la forma en que el campo eléctrico fluctúa en el tiempo, mientras que $g^{(2)}(\tau)$ cuantifica la intensidad de las fluctuaciones) dada por la ecuación 1.35 como:

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\langle n_1(t)n_2(t+\tau) \rangle}{\langle n_1(t) \rangle \langle n_2(t+\tau) \rangle} \quad (3.5)$$

donde $n_i(t)$ es el número de cuentas registradas en el detector i en el momento t .

Clásicamente, la intensidad se dividirá en partes iguales entre los puertos de salida del divisor de haz, de manera que $I_1 = I_2 = I/2$. Para las mediciones simultáneas, donde $\tau = 0$, la función de correlación de segundo orden es igual a:

$$g^{(2)}(0) = \frac{\langle I(t)^2 \rangle}{\langle I(t) \rangle^2} \quad (3.6)$$

En mecánica cuántica las intensidades de la ecuación 1.35 son tratadas como operadores $\hat{n} = \hat{a}^\dagger \hat{a}$. Para $\tau = 0$, la función de correlación está dada como:

$$g^{(2)}(0) = \frac{\langle \hat{a}_1^\dagger \hat{a}_1 \hat{a}_2^\dagger \hat{a}_2 \rangle}{\langle \hat{a}_1^\dagger \hat{a}_1 \rangle \langle \hat{a}_2^\dagger \hat{a}_2 \rangle} \quad (3.7)$$

donde \hat{a}_1 y \hat{a}_2 pueden reescribirse como:

$$\begin{aligned} \hat{a}_1 &= \frac{1}{\sqrt{2}} (\hat{a}_1 - \hat{a}_v) \\ \hat{a}_2 &= \frac{1}{\sqrt{2}} (\hat{a}_1 + \hat{a}_v) \end{aligned} \quad (3.8)$$

Con \hat{a}_v el operador correspondiente al vacío.

La función de correlación de segundo orden se convierte en:

$$g^{(2)}(0) = \frac{\langle \hat{n}_1(\hat{n}_1-1) \rangle}{\langle \hat{n}_1 \rangle^2} \quad (3.9)$$

lo cual concuerda con el resultado clásico.

Cuando esta función se calcula usando una fuente de luz coherente, el valor de la función de correlación de segundo orden será $g^{(2)}(0) = 1$. Este resultado será el mismo si es calculado de forma cuántica. Para una fuente térmica el caso es el mismo y su valor será $g^{(2)}(0) > 1$.

Sin embargo, si se calcula el valor de la ecuación 3.5 para una fuente cuyos fotones tienen un intervalo de tiempo grande entre fotones sucesivos, el valor de la función de correlación de segundo orden dará $g^{(2)}(0) < 1$, lo cual viola la desigualdad clásica $g^{(2)}(0) \geq 1$.

Como se mencionó en el capítulo 1, la función de correlación establece tres tipos de luz: el valor $g^{(2)}(0) > 1$ corresponde a luz con amontonamiento de fotones; para una fuente de luz coherente, como acaba de mencionarse, su valor es $g^{(2)}(0) = 1$ y para una fuente que solamente puede describirse cuánticamente, su valor es $g^{(2)}(0) < 1$. Este último tipo de fuente se denomina fuente de fotones individuales o luz antibunching.

Físicamente, el resultado $g^{(2)}(0) < 1$ puede explicarse de la siguiente forma: los fotones de la fuente se dirigirán a los detectores D1 y D2 con igual probabilidad, 50% para cada uno. Si consideramos el caso particular donde solamente un fotón incide en el divisor de haz, éste no podrá detectarse de forma simultánea en ambos detectores, no habrá coincidencias, así que la probabilidad simultánea de detección en $\tau = 0$ será cero. Lo que significa que la luz posee propiedades cuánticas.

Capítulo 4. Resultados y análisis.

En este capítulo se explicará detalladamente el montaje experimental del microscopio confocal, que en el capítulo 3 ya fue mencionado, y se mostrarán las correlaciones obtenidas, así como su clasificación correspondiente a la función de correlación de segundo orden.

4.1. Montaje experimental.

La Figura 4.1 muestra el diagrama experimental del microscopio confocal acoplado a un interferómetro HBT que fue construido en el laboratorio Óptica de Superficies del IF-UNAM y el laboratorio de Óptica Avanzada de la Facultad de Ciencias-UNAM.

Un haz de luz monocromática fue enviado a un espejo dicróico, este espejo fue alineado por medio de diafragmas que se colocaron sobre la línea del camino óptico donde se montarían los demás dispositivos ópticos. Una vez alineado, se colocó el objetivo de microscopio en la salida donde el espejo dicróico refleja la luz del láser.

La posición del objetivo se mantuvo fija y fue dispuesta lo más cerca al espejo dicróico, para optimizar la alineación del microscopio así como la recolección de señal. Se empleó un objetivo 60x Edmund Optics con $NA= 0.85$.

La luz atraviesa el objetivo y llega a la muestra a analizar, la luz emitida por la muestra es captada por el objetivo y viaja por el mismo camino óptico que la luz de excitación, al llegar al espejo dicróico la señal es transmitida y la luz de excitación queda filtrada.

Entre la fuente de excitación y el espejo dicróico se colocó un diafragma, con el fin de ajustar el tamaño del spot del láser con el diámetro de la apertura para la entrada del haz del objetivo de microscopio.

El interferómetro HBT consistió en colocar, después del pinhole, un divisor de haz cuyas salidas fueron enviadas a dos fotodiodos de avalancha Perkin Elmer SPCM-AQRH 15, los cuales se denominaron canal transmitido: T y canal reflejado: R.

Como luz de excitación se emplearon dos fuentes: el tercer armónico (355nm) de un láser Nd:YAG Ekspla y un láser 405nm de diodo.

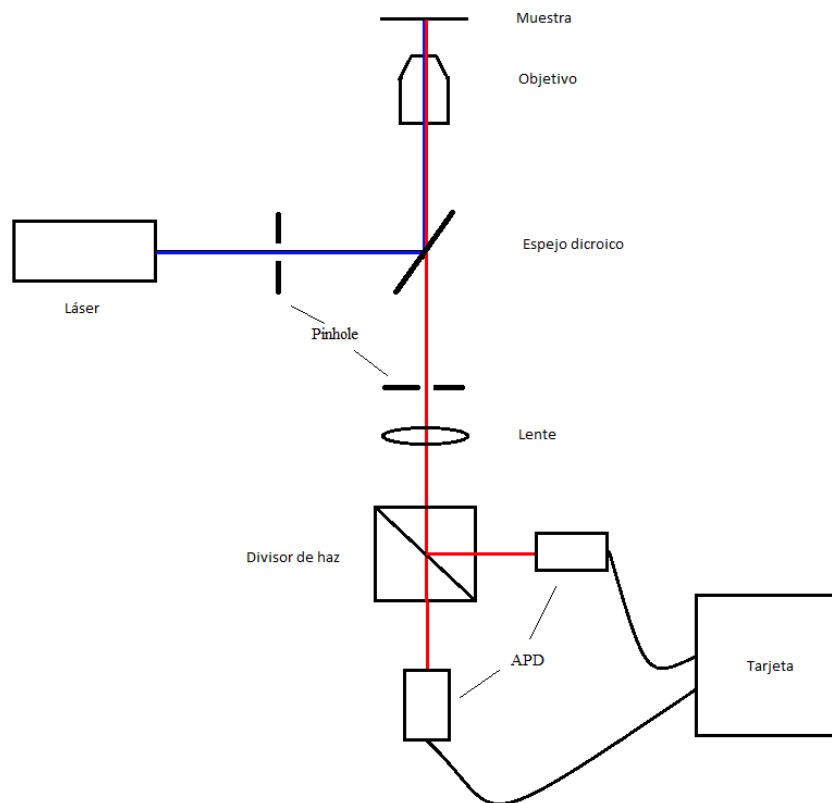


Figura 4.1. Microscopio confocal acoplado a un interferómetro HBT.

A partir de las ecuaciones 3.1 y 3.2, el diámetro y la profundidad que el microscopio confocal logra resolver son:

Para 355nm:

$$\begin{aligned} \text{Con NA}=0.85 \quad M=60x \quad d_{\text{Airy}} &= 0.51 \mu\text{m} \\ z &= 0.98 \mu\text{m} \end{aligned}$$

Para 405nm

$$\begin{aligned} \text{Con NA}=0.85 \quad M=60x \quad d_{\text{Airy}} &= 0.58 \mu\text{m} \\ z &= 1.12 \mu\text{m} \end{aligned}$$

Estas resoluciones corresponden al volumen de excitación que es enviado al plano de la imagen del objetivo de microscopio.

El objetivo 60x que se empleó en la construcción del microscopio es un objetivo no corregido al infinito, es decir, que al colocar la muestra en la distancia de trabajo del objetivo, su imagen se forma sin necesidad de una lente adicional; en este punto, la imagen está magnificada 60 veces.

Para obtener el efecto confocal, o filtraje espacial, debe colocarse un pinhole en el plano donde el microscopio enfoca la imagen y su tamaño está dado por:

$$d_{\text{pinhole}} = (d_{\text{Airy}})(M_{\text{obj}}) \quad (4.1)$$

Donde M_{obj} es la magnificación del objetivo de microscopio.

Para que la ecuación 4.1 siga siendo válida con un objetivo con corrección al infinito, es importante considerar que el foco de la lente que se emplea para enfocar la imagen no debe elegirse de forma arbitraria, sino que depende de la siguiente relación:

$$f_{\text{lente}} = (f_{\text{obj}})(M_{\text{obj}}) \quad (4.2)$$

Donde f_{obj} es el foco del objetivo, generalmente denominada distancia focal efectiva.

La ventaja de los objetivos corregidos al infinito es tener la posibilidad de colocar diversos dispositivos ópticos antes de la formación de la imagen, sin embargo, dado que lo que se buscó fue ocupar el menor espacio posible, el objetivo sin corrección al infinito resultó útil.

De acuerdo a la ecuación 4.1, el tamaño del pinhole para cada caso fue:

Para 355nm:

Con $NA=0.85$ $M=60x$ $d_{\text{pinhole}}= 30 \mu\text{m}$

Para 405nm

Con $NA=0.85$ $M=60x$ $d_{\text{pinhole}}= 35 \mu\text{m}$

Para los tamaños anteriores, en ambos casos, se colocó en el plano de la imagen un pinhole de tamaño $\approx 1UA = 30 \mu\text{m}$. Esto, debido a que la señal de las muestras empleadas fue muy débil; sin embargo, el tamaño puede ir de 0.25 UA-1 UA, dependiendo del equilibrio que se obtenga entre señal y resolución.

Después del pinhole, se colocó una lente con $f = 7.5\text{cm}$, con el propósito de enfocar la señal hacia los fotodiodos de avalancha.

Como sistema de adquisición de datos, se utilizó una tarjeta de conteo de fotones que fue prestada por el Dr. Víctor Velázquez del Laboratorio de Óptica Avanzada, FC-UNAM. El programa fue hecho por Marck Beck utilizando la plataforma Labview disponible en la referencia: (Beck M. , 2014).

El diseño del programa de la tarjeta está pensado para medir $g^2(0)$ para un arreglo Hanbury Brown con un cristal BBO, por lo que tiene la opción de adquirir mediciones para dos o tres detectores. Esta tarjeta mide la función de correlación de segundo orden para una sola ventana de coincidencia, de forma que la gráfica que va mostrando el programa es un barrido del valor de la función para un número de prueba en el tiempo cero (cuya anchura depende del tamaño de la ventana de coincidencia que se elija).

Al final de la prueba, la tarjeta hace el promedio de las mediciones y arroja el valor promedio de la función de correlación de segundo orden, así como su desviación estándar.

Como en el arreglo experimental que se realizó se emplearon dos detectores, la tarjeta convierte la ecuación 1.35 en la siguiente ecuación:

$$g^2(0) = \frac{N_{TR}}{N_T N_R} \left(\frac{\Delta T}{\Delta t} \right) \quad (4.3)$$

donde N_T y N_R son el número de cuentas de los canales T y R respectivamente, N_{TR} es el número de coincidencias entre los canales T y R, T es el tiempo total de prueba y t es la ventana de coincidencia. La deducción de la ecuación 4.3 puede encontrarse en la siguiente referencia: (Beck M. , 2007).

4.2. Imágenes obtenidas.

Se obtuvieron imágenes de las muestras a través de una cámara CCD (CoolSNAP HQ2, Photometrics) colocada a la misma distancia de los fotodiodos de avalancha. El pinhole fue retirado ya que colocado sólo se obtendrían patrones de difracción.

Para situar correctamente la cámara a la distancia correcta, se retiró la muestra y el láser se enfocó en el CCD de la cámara.

Posteriormente, se colocó la muestra a analizar con sus respectivos filtros para que solamente la cámara pudiera captar su fluorescencia emitida, se desenfocó el láser para que dejara ver los emisores y se hizo la captura de imágenes.

La Figura 4.2 a) muestra la imagen obtenida por la cámara CCD para la muestra de silicio poroso, y la b) muestra una imagen comparativa de la misma muestra obtenida mediante un microscopio de fuerza atómica tomada de la referencia: (de la Mora Mojica, 2011).

La Figura 4.3 a) muestra la imagen obtenida por la cámara CCD para la muestra Si, y la b) muestra una imagen comparativa de la muestra obtenida por micrografía TEM (Contraste Z HAADF) tomada de la referencia: (Bornacelli Camargo, 2014).

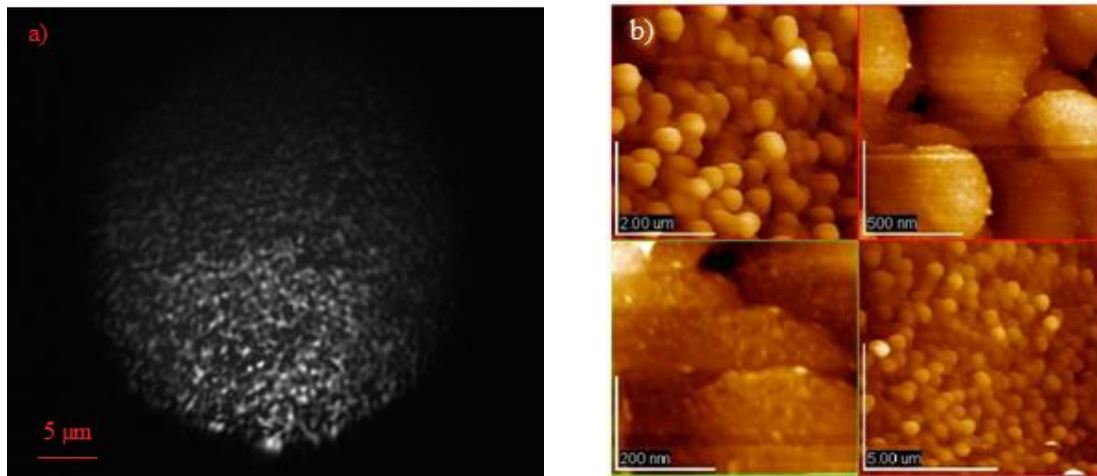


Figura 4.2 a) Imagen obtenida a través de una cámara CCD de la muestra de silicio poroso. b) Imagen de la misma muestra obtenida mediante un microscopio de fuerza atómica.

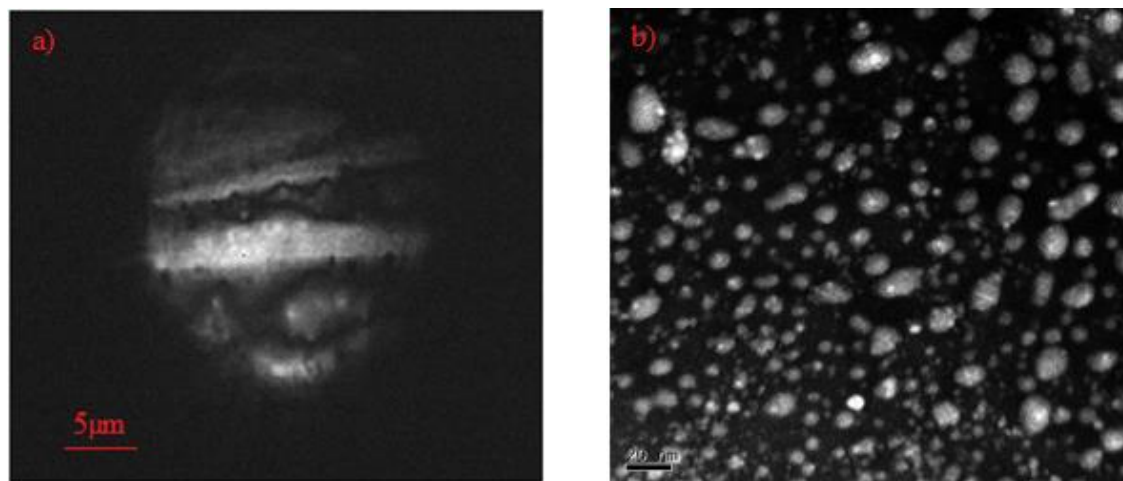


Figura 4.3 a) Imagen obtenida por la cámara CCD para la muestra Si. b) Imagen obtenida de la misma muestra mediante micrografía TEM.

Debido a que se retiró el pinhole del montaje experimental, las figuras 4.2 a) y 4.3 a) muestran imágenes del campo completo de visión del objetivo. Con estas imágenes pudo verificarse que el microscopio captó la fotoluminiscencia de las muestras.

4.3. Correlaciones obtenidas.

Como se mencionó anteriormente, el montaje experimental hecho para la fuente pulsada (láser Nd:YAG 355nm) no arrojó correlaciones claras para las fuentes antibunching.

Esto sucedió debido a que la energía del láser sobrepasó la energía umbral de daño para las muestras ($\sim 200\mu\text{J}$ por pulso), provocando que se degradaran antes de poder obtener una correlación.

Sin embargo, logró validarse el montaje experimental con la correlación obtenida para el propio láser (se colocó un espejo en lugar de una muestra para enviar la señal al microscopio). La Figura 4.4 muestra la función de correlación correspondiente para el láser de 355nm en el tiempo cero, ventana de coincidencia de 7.39ns, el valor obtenido fue $g^2(0) = 1.04 \pm 0.01$, lo cual corresponde a una fuente coherente. Este resultado nos ayuda a validar el montaje experimental realizado.

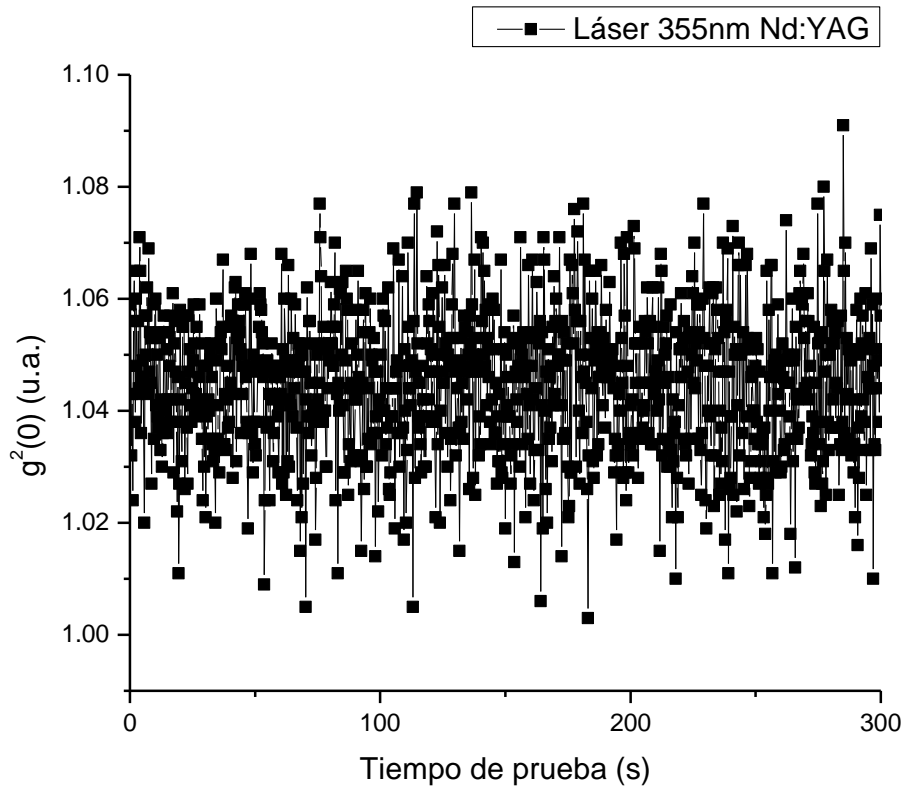


Figura 4.4. Valores de $g^2(0)$ para un láser Nd:YAG 355nm.

Para el montaje experimental hecho con el láser 405nm, las correlaciones obtenidas fueron las siguientes:

La Figura 4.5 muestra la función de correlación de segundo orden en el tiempo cero para el láser 405nm con una ventana de coincidencia de 7.39ns y cuyo valor fue $g^2(0) = 1.05 \pm 0.01$.

Este valor indica que la estadística del láser coincide con la de una fuente coherente, por lo que también valida el montaje experimental.

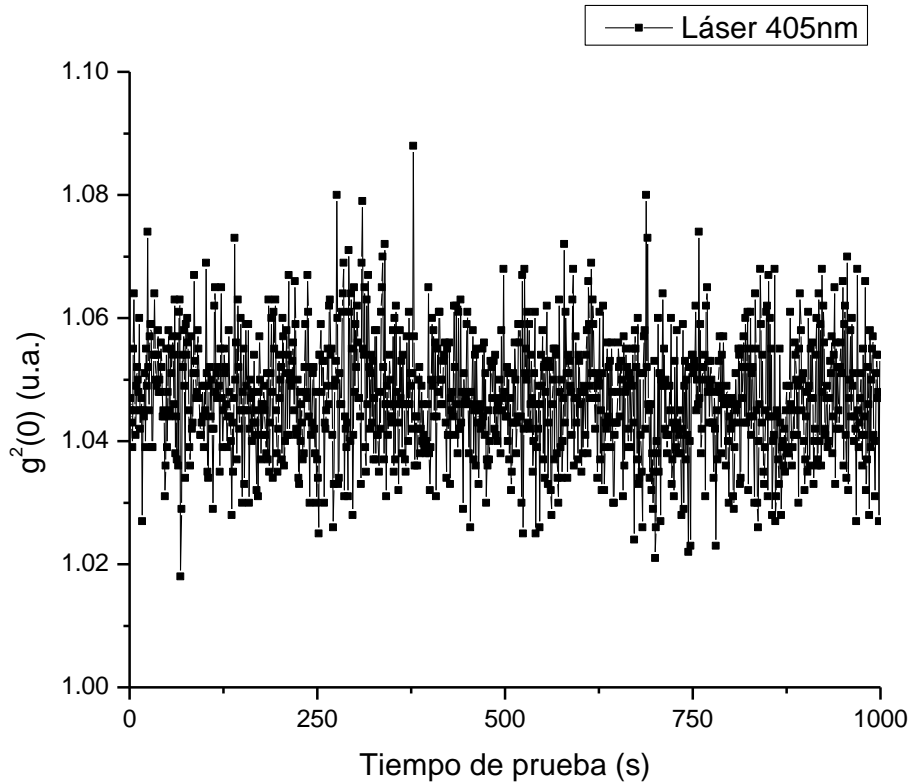


Figura 4.5. Valores de $g^2(0)$ para un láser 405nm.

La Figura 4.6 muestra la función de correlación de segundo orden en el tiempo cero para la muestra de silicio poroso, con una ventana de coincidencia de 7.39ns y cuyo valor fue $g^2(0) = 1.30 \pm 0.19$.

De acuerdo con el valor de la incertidumbre, el tipo de estadística obtenida corresponde a una fuente con amontonamiento de fotones, lo cual se esperaba desde el inicio. Como consideración mínima, se estimó que si el microscopio veía solo la superficie de la muestra, no podría resolver emisores separados pues la separación de los poros, $\approx 11\text{nm}$ (M.B. de la Mora, 2014), no cumple con el criterio de mínima resolución calculado, lo que conlleva a que el microscopio confocal vea muchos emisores; esto se comprobó al medir la alta intensidad de emisión de la muestra (≈ 1 millón de cuentas por segundo para 5mW).

Este resultado, además de los obtenidos para las fuentes coherentes, valida el montaje experimental ya que se obtuvo un valor correspondiente a una fuente con amontonamiento de fotones.

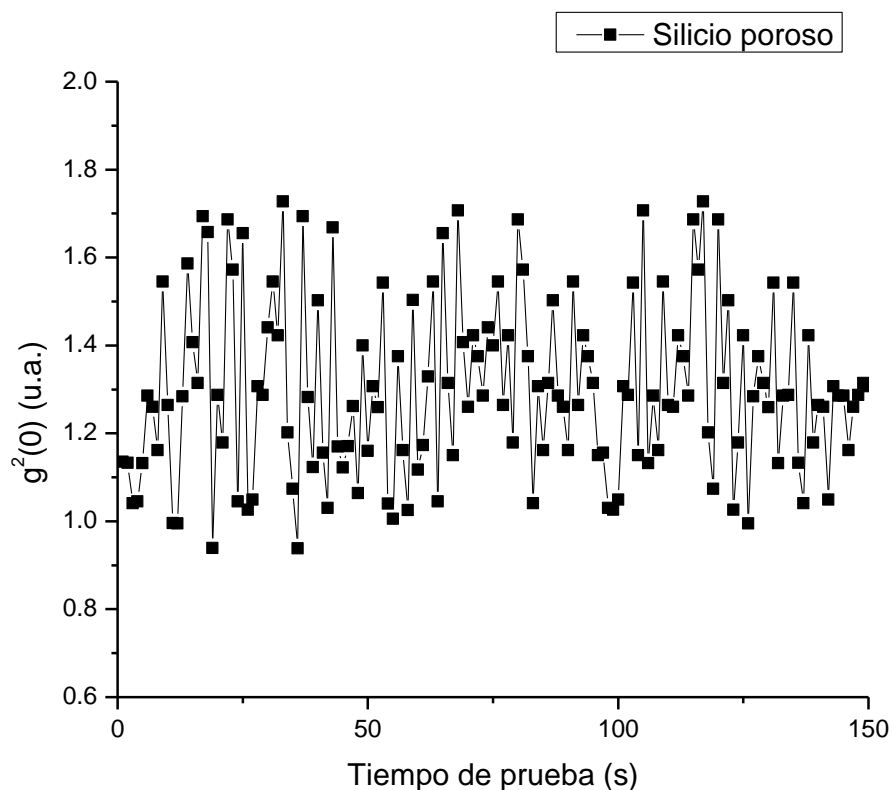


Figura 4.6. Valores de $g^2(0)$ para la muestra de silicio poroso.

La Figura 4.7 muestra la función de correlación de segundo orden en el tiempo cero para la muestra Si, con una ventana de coincidencia de 1 ns y cuyo valor fue $g^2(0) = 0.71 \pm 0.04$.

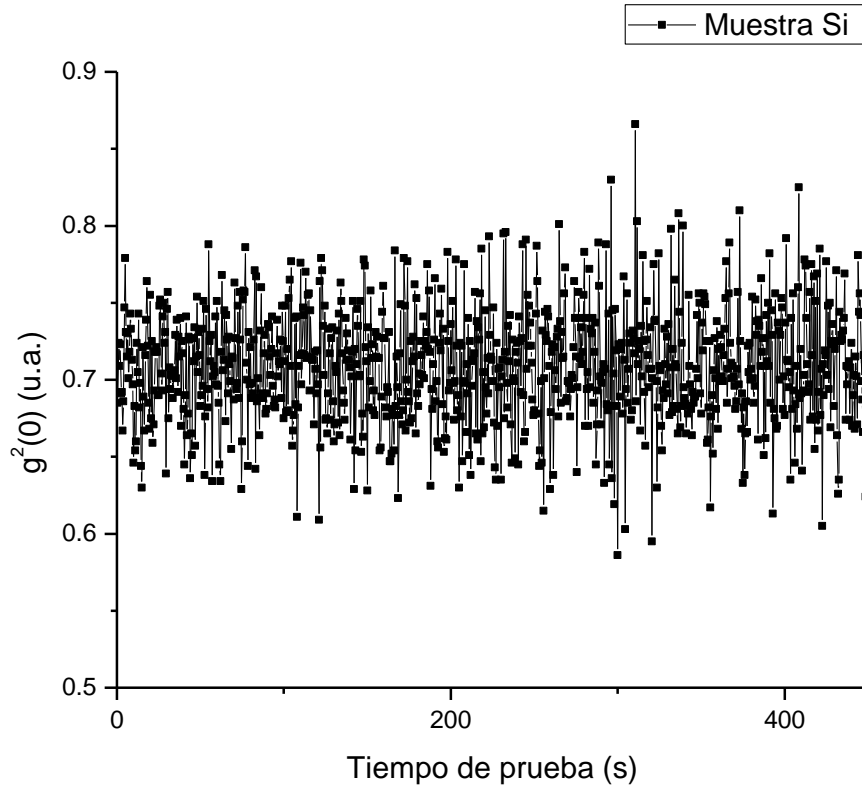


Figura 4.7. Valores de $g^2(0)$ para la muestra Si (puntos cuánticos de silicio).

La Figura 4.8 muestra otra correlación obtenida para Si, realizada en otra región de la muestra, con una ventana de 1 ns y cuyo valor fue $g^2(0) = 0.71 \pm 0.03$.

Usualmente, en la literatura se considera que se ha obtenido una fuente antibunching eficiente cuando $g^2(0) \leq 0.5$, para valores que están normalizados por la siguiente relación (Hollars, Lane, & Huser, 2003):

$$g^2(0) = \frac{N-1}{N} \tag{4.4}$$

donde N es el número de emisores.

Para las muestras Si y SiAg, se calculó que en promedio la distancia entre los nanocristales de silicio era de 3nm (Bornacelli Camargo, 2014), pero dado que solamente los nanocristales con tamaños menores a 10 nm se comportan como puntos cuánticos y debido a que la distribución de los tamaños de los nanocristales no puede calcularse (además de que hay formación de cúmulos de nanocristales en la muestra), no se pudo hacer una estimación de los emisores que el microscopio confocal veía y por lo tanto los valores de $g^2(0)$ se presentan sin normalizar.

Sin embargo, las medidas de $g^2(0)$ correspondientes a la muestra Si y SiAg se toman como antibunching, debido a que estos valores así como los obtenidos para validar el montaje experimental, nos indican que las fluctuaciones alrededor del promedio de $g^2(0)$ que obtuvo la tarjeta fueron pequeñas respecto al valor obtenido, lo que nos indica una buena medición.

Además, si se toma como referencia el valor $g^2(0) > 1$ obtenido para la fuente hecha de silicio poroso (fuente con amontonamiento de fotones), se observa que los emisores de dicha muestra estaban más separados respecto a los emisores de las muestras Si y SiAg (suponiendo que todos los nanocristales fueron puntos cuánticos). Con esta consideración, la probabilidad de obtener amontonamiento de fotones era más alta para las muestras Si y SiAg y en caso de haberlo observado, se debió obtener un valor igual o mayor que el obtenido para la muestra de silicio poroso.

En realidad, como se mencionó anteriormente, no todos los nanocristales de las muestras fueron puntos cuánticos y no todos los puntos cuánticos se activan al ser excitados. Para la muestra Si se presentan dos valores de $g^2(0)$ que son semejantes entre sí y que fueron obtenidos en distintos puntos de la muestra, por lo que también se considera que se obtuvo antibunching.

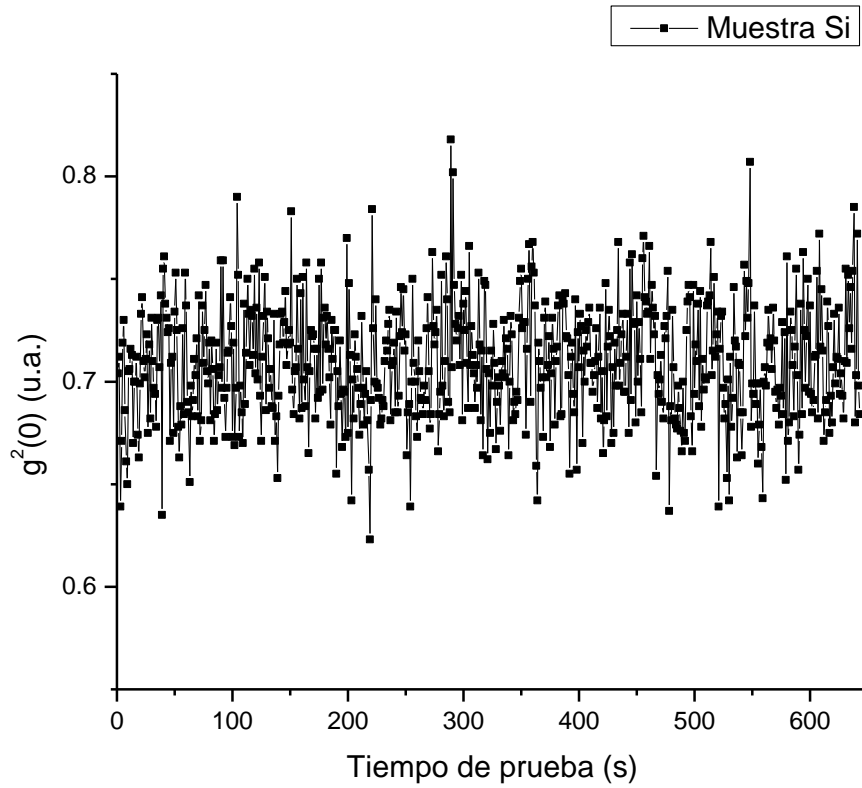


Figura 4.8. Otros valores obtenidos de $g^2(0)$ para la muestra Si.

La Figura 4.9 muestra la función de correlación de segundo orden en el tiempo cero para la muestra de SiAg, con una ventana de coincidencia de 11ns y cuyo valor fue $g^2(0) = 0.69 \pm 0.04$.

El valor también se considera como antibunching por las mismas consideraciones que se dieron para la muestra Si.

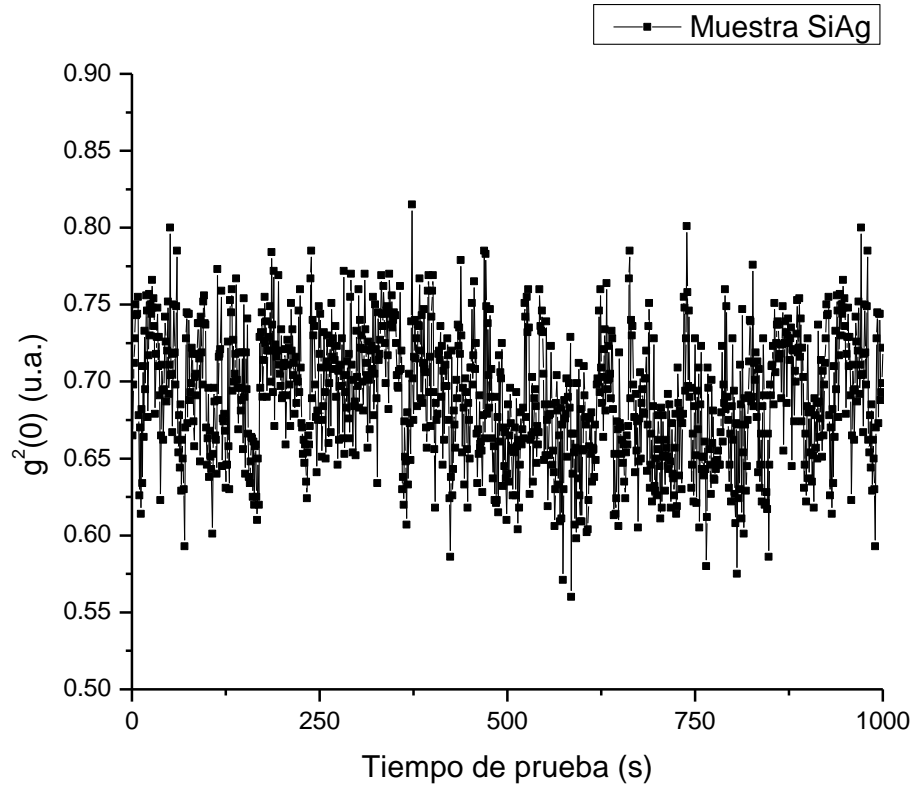


Figura 4.9. Valores de $g^2(0)$ para la muestra SiAg (puntos cuánticos de silicio con implantaciones de nanopartículas de plata).

Conclusiones.

Se comprobó que el montaje experimental funcionó correctamente, pues se lograron obtener las correlaciones correspondientes a una fuente con amontonamiento de fotones (silicio poroso) cuyo valor fue $g^2(0) = 1.30 \pm 0.19$ y dos fuentes coherentes: láser pulsado de 355nm cuyo valor fue $g^2(0) = 1.04 \pm 0.01$ y un láser continuo de 405nm con valor $g^2(0) = 1.05 \pm 0.01$.

Para las fuentes de las que se esperaba fueran fuentes de fotones individuales o antibunching, las correlaciones obtenidas fueron:

Muestra Si.

$$g^2(0) = 0.71 \pm 0.04$$

$$g^2(0) = 0.71 \pm 0.03$$

Muestra SiAg.

$$g^2(0) = 0.69 \pm 0.04$$

Como se dijo anteriormente, las incertidumbres de las mediciones para todas las estadísticas fueron pequeñas respecto al valor obtenido, por lo que se considera que el sistema de adquisición arrojó medidas confiables.

Si bien, los valores obtenidos para las muestras Si y SiAg cumplieron con la condición teórica $g^2(0) < 1$ para ser fuentes de fotones individuales, debido a que el valor obtenido no pudo normalizarse y fue mayor a 0.5, se considera que el método y características de elaboración (profundidad, distribución) de las muestras producen fuentes antibunching poco eficientes.

Otra razón para considerar que se obtuvo antibunching fue que a pesar de que se colocaron filtros y densidades ópticas para atenuar la luz de excitación, el láser lograba llegar a los detectores, lo que influyó en el conteo de coincidencias.

De acuerdo con los artículos de las referencias (Wu XW, 2010) (C. T. Yuan, 2009), se esperaba que el valor para la muestra SiAg fuera menor, es decir, que presentara más antibunching.

Sin embargo, no se puede decir con seguridad que hubo efectos plasmónicos en las muestras, ya que la separación entre los máximos de distribución de los nanocristales de Si y las nanopartículas de Ag es de $\approx 1\mu\text{m}$, dicha distancia están en el límite de los efectos de campo cercano producidos por las nanopartículas de plata.

Preliminarmente puede concluirse que las nanopartículas metálicas presentes en la muestra SiAg contribuyen a la difusión de Hidrógeno en las muestras, el cual ayuda al mejoramiento de la intensidad de la fotoluminiscencia (Bornacelli , Reyes-Esqueda, Rodríguez-Fernández, & Oliver, 2013).

Se concluye que los resultados de $g^2(0)$ correspondientes a las muestras Si y SiAg comprueban que la presencia de nanopartículas metálicas en los emisores de fotones individuales estudiados no modifica la estadística de emisión de estos, lo que conlleva a una posible mejora en fuentes de fotones individuales de silicio con intensidad de emisión amplificada.

Como trabajo futuro se propone mejorar el montaje experimental desarrollado para aumentar la precisión de las medidas y la resolución del microscopio confocal.

Obtener muestras cuyos tamaños puedan ser controlados y cuya separación entre emisores cumplan la condición de la ecuación 3.1, la cual establece la mínima separación entre objetos para que el microscopio confocal pueda resolverlos. Además de que también deben de cumplir con la ecuación 3.2, en caso de que los emisores estén debajo de la superficie de la matriz.

Considerar que la distancia entre emisores individuales y nanopartículas metálicas debe estar dentro del régimen del campo cercano para poder estudiar con seguridad los efectos que ocasiona sobre la estadística de emisión.

Calibrar el montaje con una fuente de fotones individuales cuyo valor $g^2(0)$ sea bien conocido. De hecho, se intentó calibrar con películas delgadas de Rh6G (fluoróforo que a bajas concentraciones $< 5 \times 10^{-3}M$ presenta antibunching), pero el ambiente las degradó antes de poder realizar mediciones, ya que fueron hechas sobre vidrio sin ningún tratamiento para protegerlas, y ya no se pudieron hacer otras muestras que fueran más resistentes.

Emplear un sistema de adquisición de imágenes que muestre los emisores activados que el microscopio confocal detecta.

Finalmente, para reconstruir la curva completa de la función de correlación de segundo orden, mejorar el sistema de adquisición de datos para obtener la función $g^2(\tau)$ con distintos tiempos de retraso τ .

Bibliografía.

- A. González-Tudela, P. A.-M.-V. (2013). Theory of Strong Coupling between Quantum Emitters and Propagating Surface Plasmons. *Phys Rev* 110, 126801.
- A. V. Akimov, A. M. (2007). Generation of single optical plasmons in metallic nanowires coupled to quantum dots. *Nature* 450, 402-406.
- A.G. Cullis, L. C. (1991). Visible light emission due to quantum size effects in highly porous crystalline silicon. *Nature* 353 , 335 .
- Beck, M. (2007). Comparing measurements of $g_2(0)$ performed with different coincidence detection techniques. *J. Opt. Soc. Am. B*, 24:2972-2978.
- Beck, M. (2014). *DE2 CCU*. Obtenido de <http://people.whitman.edu/~beckmk/QM/circuit/circuit.html>
- Benami, A., López-Suárez, A., Rodríguez-Fernández, L., Crespo-Sosa, A., Cheang-Wong, J., Reyes-Esqueda, J., & Oliver, A. (2012). Enhancement and quenching of photoluminescence from silicon quantum dots by silver nanoparticles in a totally integrated configuration. *AIP Advances* 2, 012193.
- Beveratos, A. (2002). Réalisation expérimentale d'une source de photons uniques par fluorescence de centres colorés dans le diamant: Application à la cryptographie quantique. *PhD Thesis*. Université Paris XI Orsay.
- Bissel, L. J. (2011). Experimental realization of Efficient Room Temperature Single-Photon Sources with Definite Circular and Linear Polarizations. *PhD Thesis*. University of Rochester.
- Bornacelli , J., Reyes-Esqueda, J., Rodríguez-Fernández, L., & Oliver, A. (2013). Improving Passivation Process of Si Nanocrystals Embedded in SiO₂ Using Metal Ion Implantation. *Journal of Nanotechnology*, 736478, 9.
- Bornacelli Camargo, J. E. (2014). Aumento de la emisión de fotoluminiscencia de nanocristales de Si embebidos en sílice (SiO₂) usando implantación de iones metálicos (Ag, Au, Pt). *Tesis de Doctorado en Ciencias Físicas*. Universidad Nacional Autónoma de México.
- C. T. Yuan, P. Y. (2009). Antibunching Single-Photon Emission and Blinking Suppression of CdSe/ZnS Quantum Dots. *ACS Nano* 3 (10), 3051–3056.
- Canham, L. T. (1990). Silicon quantum wire array fabrication by electrochemical and chemical dissolution of wafers. *Applied Physics Letters*, 57, 1046-1048.
- Daniel C. Hannah, J. Y. (2012). On the Origin of Photoluminescence in Silicon Nanocrystals: Pressure-Dependent Structural and Optical Studies. *Nano Letters* 12 (8), 4200-4205.
- Darrick E. Chang, A. S. (2007). A single-photon transistor using nanoscale surface plasmons. *Nature Physics* 3, 807 - 812.
- de la Mora Mojica, M. B. (2011). Transmisión anómala en multicapas de silicio poroso. *Tesis de Doctorado en Ciencias e Ingeniería de Materiales*. Universidad Nacional Autónoma de México.
- Dena, O. S. (2013). Estudio de la respuesta óptica no lineal de tercer orden de nanopartículas de oro en zafiro: efectos de tamaño y forma. *Tesis de Licenciatura en Física*. Universidad Nacional Autónoma de México.

- El-Kork, N. (2009). Near field optical spectroscopy of hybrid nanoparticles for biosensor application and confocal microscopy of single silicon nanocrystals. *PhD Thesis*. Université Claude Bernard - Lyon I.
- Fakonas, J. S. (2015). Quantum Interference and Entanglement of Surface Plasmons. *PhD Thesis*. California Institute of Technology.
- Fox, M. (2006). *Quantum optics: an introduction*. Oxford: Oxford University.
- Hans Mertens, J. S. (2006). Polarization-Selective Plasmon-Enhanced Silicon Quantum-Dot Luminescence. *Nano Letters* 6 , 2622-2625.
- Hernández González, E. M. (2008). Generación de centros de color NV en nanopartículas de diamante para la emisión de estados no clásicos de luz. *Tesis de Licenciatura*. Universidad Nacional Autónoma de México.
- Hernández González, E. M. (2011). Caracterización de la correlación de fotones usando la densidad espectral de energías. *Tesis de Maestría en Ciencias Físicas*. Universidad Nacional Autónoma de México.
- Hollars, C. W., Lane, S. M., & Huser, T. (2003). Controlled non-classical photon emission from single conjugated polymer molecules. *Chemical Physics Letters* 370, 393-398.
- Hyvärinen, H., Turunen, J., & Vahimaa, P. (2010). Elementary-field modeling of surface-plasmon excitation with partially coherent light. *Applied Physics* 101, 273-282.
- Julie S. Biteen, D. P. (2005). Enhanced Radiative Emission Rate and Quantum Efficiency in Coupled Silicon Nanocrystal-Nanostructured Gold Emitters. *Nano Letters* 5 (9), 1768-1773.
- Julie S. Biteen, L. A. (2007). Plasmon-Enhanced Photoluminescence of Silicon Quantum Dots: Simulation and Experiment. *The Journal of Physical Chemistry C* 111 (36), 13372-13377.
- L. Tamayo-Rivera, R. C.-H.-F.-R.-E. (2011). Wavelength-varying third-order nonlinear optical response of Ag nanoparticles-Si quantum dots integrated plasmonic system. *Opt. Mater. Express* 1, 980-989 .
- M. S. Tame, K. R. (2013). Quantum plasmonics. *Nature Physics* 9, 329–340.
- M.B. de la Mora, J. B.-E. (2014). Porous silicon photoluminescence modification by colloidal gold nanoparticles: Plasmonic, surface and porosity roles. *Journal of Luminescence* 146, 247-255.
- Minsky, M. (1957). *Patente n° US3013467 A*.
- Nilsson, P. (2009). Single photon sources using confocal microscopy. *Master Thesis*. Stockholm University.
- R. Marty, A. A. (2010). Photon antibunching in the optical near field. *Phys. Rev. B* 82, 081403.
- Saleh, B. E., & Teich, M. C. (1991). *Fundamentals of Photonics*. EUA: John Wiley & Sons, Inc.
- Sotckman, M. (2011). Nanoplasmonics: past, present and glimpse into future. *Opt. Express* 19, 22029-22106.
- Steel, M. (2014). Quantum plasmonics: Two-plasmon interference. *Nature Photonics* 8, 273–275.
- Tame, M., Lee, C., Lee, J., Ballester, D., Paternostro, M., Zayats, A., & Kim, M. (2008). Single-Photon Excitation of Surface Plasmon Polaritons. *Phys. Rev.* 101, 190504.

- Varró S., K. N. (2011). Hanbury Brown – Twiss type correlations with surface plasmon. *J. Mod. Opt.* 58, 2049-2059.
- Wu XW, G. M. (2010). Anti-bunching and luminescence blinking suppression from plasmon-interacted single CdSe/ZnS quantum dot. *Opt Express* 18, 6340-6.
- Yoffe, A. D. (1993). Low-dimensional systems: quantum size effects and electronic properties of semiconductor microcrystallites (zero-dimensional systems) and some quasi-two-dimensional systems. *Advances in Physics* 42 , 173-262.
- Zayats, A., Smolyaninov, I., & Maradudin, A. (2005). Nano-optics of surface plasmon polaritons. *Phys. Rev.* 408, 131-314.