

Generación de Segundo Armónico en Metamateriales Nanoestructurados

por

Ulises Ramírez Meza

Para obtener el grado de:
Maestro en Ciencias (Óptica).

Asesor:

Dr. Bernardo Mendoza Santoyo

Centro de Investigaciones en Óptica, A.C.
Loma del Bosque 115, León, Guanajuato, 37150, México

Julio, 2017

Generación de Segundo Armónico en Metamateriales Nanoestructurados

por

Ulises Ramírez Meza

Aprobado:

Dr. Bernardo Mendoza Santoyo

Asesor

Dra. Laura Elena Casandra Rosales Zárate

Secretaria

Dr. Enrique Castro Camus

Vocal

Centro de Investigaciones en Óptica, A.C.

Loma del Bosque 115, León, Guanajuato, 37150, México

Julio, 2017

*“Solo si nos detenemos a pensar en las
pequeñas cosas llegaremos a comprender las
grandes”*

JOSÉ SARAMAGO

AGRADECIMIENTOS

Los logros que un ser humano cosecha a lo largo de la vida jamás serían posibles sin el apoyo de grandes personas, mismas que uno tiene la fortuna de cruzarse a lo largo del camino.

En primer lugar, quiero agradecer a mi familia; mis padres Carolina y Tomás, por siempre ser un gran ejemplo para mi y enseñarme que no hay conocimiento que uno puede adquirir jamás será nada sin la calidad humana. A mi hermano David, por todo el apoyo que siempre me ha brindado a pesar de las adversidades, a pesar de cualquier circunstancia.

No menos importante, quiero agradecer al Dr. Bernardo Mendoza, en primer lugar por aceptarme como su alumno para este trabajo, después, por la infinita paciencia que me ha tenido a lo largo de este tiempo. Sus conocimientos siempre serán fuente de inspiración para las generaciones venideras, así como lo ha sido para mí. Extiendo este agradecimiento al Dr. W. Luis Mochán, quien me recibió de la mejor manera en mi pequeña estancia en el Instituto de Ciencias Físicas y siempre tuvo la mejor disposición de compartir sus conocimientos conmigo.

A todos los profesores, investigadores, sus enseñanzas han sido un pilar fundamental para mi formación a lo largo de estos dos años. Al personal en general que labora en el CIO, gracias a ellos mi estancia en este centro ha sido de lo mas placentera . A todos mis compañeros estudiantes del CIO, en especial a mis compañeros de generación: Paula, Ana, Jacqui, Laura, Brenda, Zefe, Takah y Jona, por el gran grupo que formamos en este tiempo. Siempre estaré agradecido con lo que he aprendido de cada uno de ellos y por el apoyo que siempre recibí. A mi amigo y compañero Alfredo, por todo el apoyo.

Al Consejo Nacional de Ciencia y Tecnología (CONACyT), por el apoyo brindado mediante la beca No. 589138, sin este apoyo nada de esto sería posible.

Resumen

En esta tesis se formula un método efectivo para calcular la susceptibilidad no lineal de segundo orden, $\chi_{ijk}^{(2)}(2\omega)$, de un metamaterial nanoestructurado, compuesto por un anfitrión y un huésped cuya forma geométrica se escoge para amplificar los efectos ópticos no lineales. Las funciones dieléctricas del anfitrión y del huésped son tomadas de datos bien conocidos. Considerando los efectos de campo local y haciendo la aproximación de longitud de onda larga se propone un método de homogenización del campo eléctrico, de manera tal que podemos calcular la respuesta macroscópica del sistema a través de los efectos colectivos de las interacciones microscópicas.

CONTENIDO

1	Introducción.	1
1.1.	Metamateriales.	1
1.1.1.	Contexto Histórico.	1
1.1.2.	Propiedades Ópticas de Metamateriales.	3
1.2.	Fenómenos Ópticos No Lineales.	4
1.2.1.	Efectos de la simetría en la Generación de Segundo Armónico.	7
2	Cálculo de propiedades ópticas de metamateriales.	9
2.1.	Respuesta macroscópica en metamateriales nanoestructurados.	10
2.1.1.	Teoría General.	10
2.1.2.	Sistemas Binarios Periódicos.	12
2.1.3.	Método Recursivo de Haydock.	14
2.2.	Modelo Dipolar para GSA.	16
2.3.	Campo Eléctrico.	18
3	Resultados.	19
3.1.	Cálculo de $\chi_{ijk}^{(2)}(2\omega)$ con inclusiones de vacío en plata, con fracción de llenado = 0.035.	20
3.1.1.	Cálculo de $\chi_{ijk}^{(2)}(2\omega)$ con inclusiones de vacío en plata, con fracción de llenado = 0.0125.	24

3.1.2. Cálculo de $\chi_{ijk}^{(2)}(2\omega)$ con inclusiones de vacío en plata, con fracción de llenado = 0.068.	28
4 Conclusiones.	33
Bibliografía	35

LISTA DE FIGURAS

2.1. Esquema de un metamaterial hecho con un material descrito por $\epsilon_a(\omega)$ con inclusiones de un material descrito por $\epsilon_b(\omega)$. El sistema es invariante a lo largo de z y periódico en xy	12
3.1. Arreglo periódico para las inclusiones de vacío en forma de cruz en un anfitrión de plata con fracción de llenado de $= 0.035$	20
3.2. Progresión en el comportamiento de $ \chi_{xxx}^{(2)}(2\omega) $	22
3.3. Animación para $ \chi_{xxx}^{(2)}(2\omega) $ como función de la frecuencia del campo incidente. Abrir tesis.pdf con ayuda del Acrobat Reader.	23
3.4. Componentes diferentes de cero para la susceptibilidad no lineal.	23
3.5. Arreglo periódico para las inclusiones de vacío en la plata para formas en cruz con una fracción de llenado $= 0.0125$	25
3.6. Progresión en el comportamiento de $ \chi_{xxx}^{(2)}(2\omega) $	26
3.7. Animación para $ \chi_{xxx}^{(2)}(2\omega) $ como función de la frecuencia del campo incidente. Abrir tesis.pdf con ayuda del Acrobat Reader.	27
3.8. Componentes diferentes de cero para la susceptibilidad no lineal.	27
3.9. Arreglo periódico para las inclusiones de vacío en la plata para formas en cruz con una fracción de llenado $= 0.068$	28
3.10. Animación para $ \chi_{xxx}^{(2)}(2\omega) $ como función de la frecuencia del campo incidente. Abrir tesis.pdf con ayuda del Acrobat Reader.	29

3.11. Progresión en el comportamiento de $|\chi_{xy}^{(2)}(2\omega)|$ 30

3.12. Animación para $|\chi_{xy}^{(2)}(2\omega)|$ como función de la frecuencia del campo incidente.
 Abrir tesis.pdf con ayuda del Acrobat Reader. 31

3.13. Componentes diferentes de cero para la susceptibilidad no lineal. 31

1 INTRODUCCIÓN.

Sumario

1.1. Metamateriales.	1
1.1.1. Contexto Histórico.	1
1.1.2. Propiedades Ópticas de Metamateriales.	3
1.2. Fenómenos Ópticos No Lineales.	4
1.2.1. Efectos de la simetría en la Generación de Segundo Armónico.	7

1.1. Metamateriales.

1.1.1. Contexto Histórico.

Desde el comienzo de los estudios en el campo de la Óptica, los que se desenvuelven en esta disciplina, se han esforzado en utilizar las propiedades de los materiales que existen de manera natural para poder controlar la luz. Tales han sido los avances tecnológicos y las necesidades para estudiar las propiedades de la luz y su interacción con la materia, que no ha sido suficiente con los materiales que nos brinda la naturaleza para realizar dichas actividades. Para ampliar aún mas el control sobre la luz, se han creado materiales artificiales, diseñados especialmente para exhibir nuevas e inusuales propiedades electromagnéticas, difíciles, exóticas ó hasta

imposibles de encontrar en el medio natural [1].

El primer intento para explorar un material *artificial* se remonta a la última parte del siglo XIX, cuándo en 1898 Jagadis Chunder Bose realizo un experimento con microondas sobre materiales a los que se les modificaba su estructura, girandola ó retorciéndola, dándose cuenta que estos eran precisamente materiales quirales, que se obtuvieron artificialmente [2]. La quiralidad fue una de las primeras propiedades de estos nuevos materiales en las que se comenzó a trabajar, antes de que se les denominara formalmente metamateriales.

Cuándo se habla de un metamaterial, podemos referirnos a aquellos materiales que han sufrido alguna modificación en su estructura pero no en su composición química. Tal fue el caso de Lindman en 1914 [3], quién trabajo con medios quirales artificiales, generados por la incorporación de alambres pequeños en forma de hélice, acomodados de forma aleatoria en una matriz. Por otra parte Kock en 1948, [4] logró fabricar lentes ligeras en el espectro de las microondas mediante la disposición de esferas conductoras, discos y tiras periódicas dispuestas en la lente, adaptando así el índice de refracción efectivo del medio.

A partir de la publicación de John Pendry en el 2000 sobre materiales con índice de refracción negativo y la posibilidad de crear lentes perfectas por medio de ellos [5], ha surgido un interés mayor en el estudio de esta área, como así también, un aumento en los trabajos académicos relacionados al tema. Por esta razón, se han desarrollado técnicas experimentales para poder fabricar estos materiales como lo son la litografía de alta resolución por haz de electrones o el fresado por iones. También se han desarrollado técnicas para caracterizar su comportamiento, además, existen modelos teóricos capaces de calcular y predecir las propiedades de estos. Dichos métodos son tan poderosos, que son capaces de realizar predicciones en un amplio rango de escalas, partiendo desde los nanómetros hasta llegar a la escala milimétrica.

Formalmente, los metamateriales se pueden definir al menos de tres maneras. Primeramente, el prefijo “meta” viene del Griego y significa *después ó más allá*, suele utilizarse para denotar algo que ha ocurrido derivado de una transformación, que trasciende a algo más.

Por lo tanto, se espera que un metamaterial exhiba una o mas propiedades cualitativamente diferentes, más alla de las que presentan sus constituyentes *ordinarios*: “*el todo es mas que la suma de sus componentes*” [6].

Rodger M. Walser fue el primero en utilizar la palabra *metamaterial*, dando la siguiente definición:

“Los metamateriales se definen como compuestos macroscópicos que han sido fabricados por el hombre, y que tienen una estructura 3-dimensional, periódica, diseñada para producir una combinación optimizada, no disponible en la naturaleza, de dos o más respuestas a una excitación específica” [7].

Otra definición para un metamaterial puede ser la que da J. Valentine [8] *“Los metamateriales son estructuras artificiales que tienen propiedades no alcanzables con materiales naturales”*.

y una última por Bora Ung [6]:

“Un metamaterial es un material compuesto cuya microestructura está diseñada artificialmente de tal manera que la respuesta macroscópica efectiva emergente de la estructura a una excitación dada no se encuentra fácilmente en la naturaleza”.

Esta última, quizá sea una de las que mejor se acopla a lo que más adelante se analizará. Aunque estas definiciones bien pueden aplicarse a cualquier área dónde se utilicen dichos materiales, nuestro interés esta basado en los que exhiben propiedades electromagnéticas, de las cuáles se hablará en la siguiente subsección.

1.1.2. Propiedades Ópticas de Metamateriales.

Es necesario hacer la distinción entre un metamaterial y otros dispositivos ópticos estrechamente relacionados con ellos, como lo son los cristales fotónicos. La diferencia entre estos dos dispositivos recae básicamente en el tamaño de la celda unitaria, a , de la estructura periódica. Típicamente para un metamaterial la celda unitaria debe ser mucho mas pequeña que la longitud de onda, λ , de la onda incidente, e.g. $a \ll \lambda$. Existe la condición denominada

condición de homogeneidad efectiva [9], la cual establece que el tamaño de celda unitaria deseado para un metamaterial debe cumplir que

$$a \leq \frac{\lambda}{4}, \quad (1.1)$$

para asegurar que los fenómenos de refracción dominarán sobre los fenómenos de dispersión y difracción. Si esta condición se cumple, la estructura se comporta como un material real, en el sentido de que las ondas electromagnéticas solo responden a los parámetros constitutivos promedio que dependen de la naturaleza de la celda unitaria, donde se supone que la estructura es homogénea a través de la dirección de propagación. Los parámetros constitutivos son la función dieléctrica $\epsilon(\omega)$ y la permeabilidad magnética μ , cuyos valores están relacionados con el índice de refracción $n(\omega)$ mediante

$$n = \pm\sqrt{\epsilon(\omega)\mu}, \quad (1.2)$$

donde ω es la frecuencia de la onda electromagnética y en esta tesis se toma $\mu = 1$, ya que no se consideran los efectos magnéticos. En la ecuación, (1.2), se consideran los dos signos de la raíz cuadrada para $n(\omega)$, mismos que corresponden a materiales derechos (signo +) y materiales izquierdos (signo -). El índice de refracción negativo fue predicho en 1967 [10], y en 2004 fue posible crear un metamaterial con esta característica [11]. De la misma forma hay una gran cantidad de literatura donde se han abordado los efectos ópticos lineales de una enorme variedad de metamateriales, por ejemplos los trabajos del grupo del CIO, [12, 13]. En esta tesis extendemos la investigación hacia las propiedades ópticas no lineales, en particular la generación de segundo armónico (GSA).

1.2. Fenómenos Ópticos No Lineales.

Los efectos ópticos no lineales son de gran interés por su amplia gama de aplicaciones, y son generados cuando un haz muy intenso de luz incide sobre un material. Para describir este proceso es necesario hablar de la polarización \mathbf{P} [14]. Esta cantidad es la encargada de

describir la respuesta óptica de un material. Tomando las ecuaciones de Maxwell para el campo eléctrico \mathbf{E} y magnético \mathbf{B} , como

$$\nabla \cdot \mathbf{E} = 4\pi\rho^{\text{tot}} \quad (1.3)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{B} = 0 \quad (1.4)$$

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\frac{1}{c} \frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} \quad (1.5)$$

$$\nabla \times \mathbf{B} = \frac{4\pi}{c} \mathbf{J}^{\text{tot}} + \frac{1}{c} \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} \quad (1.6)$$

donde la densidad de carga total, ρ^{tot} , y la corriente total, \mathbf{J}^{tot} , están relacionadas, con sus contrapartes externas, a través de

$$\rho^{\text{tot}} = \rho^{\text{ext}} - \nabla \cdot \mathbf{P} \quad (1.7)$$

$$\mathbf{J}^{\text{tot}} = \mathbf{J}^{\text{ext}} + \frac{\partial \mathbf{P}}{\partial t} + c\nabla \times \mathbf{M} \quad (1.8)$$

donde \mathbf{M} corresponde a la magnetización. Podemos relacionar a los campos \mathbf{E} y \mathbf{B} con \mathbf{P} y \mathbf{M} de la siguiente manera

$$\mathbf{D} \equiv \mathbf{E} + 4\pi\mathbf{P} \quad (1.9)$$

$$\mathbf{B} \equiv \mathbf{H} + 4\pi\mathbf{M} \quad (1.10)$$

siendo \mathbf{D} el vector de desplazamiento eléctrico y \mathbf{H} la inducción magnética. De manera tal, que si tomamos la divergencia de \mathbf{D}

$$\nabla \cdot \mathbf{D} = 4\pi\rho^{\text{ext}} \quad (1.11)$$

y el rotacional de \mathbf{H}

$$\nabla \times \mathbf{H} = \frac{4\pi}{c} \mathbf{J}^{\text{ext}} + \frac{1}{c} \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t} \quad (1.12)$$

con lo cual procediendo de la manera usual, podemos obtener la ecuación de onda

$$\nabla \times \nabla \times \mathbf{E} + \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{D}}{\partial t^2} = \frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial \mathbf{J}^{\text{ext}}}{\partial t}. \quad (1.13)$$

Relacionando la corriente externa con la polarización mediante

$$\mathbf{J}^{\text{ext}} = \frac{\partial^2 \mathbf{P}}{\partial t^2} \quad (1.14)$$

obtenemos finalmente que

$$\nabla \times \nabla \times \mathbf{E} + \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathbf{E} = \frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{P}}{\partial t^2}. \quad (1.15)$$

Es claro ver que \mathbf{P} actúa como fuente en la ecuación de onda, y para este trabajo, la expresamos como una serie de potencias en función de \mathbf{E} ,

$$\mathbf{P} = \epsilon_0 \left[\chi^{(1)} E + \chi^{(2)} E^2 + \chi^{(3)} E^3 + \dots \right] \quad (1.16)$$

$$\equiv P^{(1)} + P^{(2)} + P^{(3)} + \dots, \quad (1.17)$$

donde $\chi^{(n)}$ es la susceptibilidad de orden n del material. A su vez, podemos definir a la susceptibilidad como una función de proporcionalidad que describe el grado de polarización de un material en términos del campo eléctrico que incide sobre el. El término lineal corresponde al primer término de la serie de la ecuación de arriba, e.g.

$$\mathbf{P}^{(1)} = \epsilon_0 \chi^{(1)} \mathbf{E}, \quad (1.18)$$

que describe las interacciones lineales entre la luz y la materia, que son las más comunes, como los fenómenos de reflexión, transmisión y refracción de la luz. Los términos de orden mayor a uno, son los que dan el comportamiento óptico no lineal, y en general las susceptibilidades no lineales $\chi^{(n)}$ son muy pequeñas [15]. Esto explica el por que los fenómenos no lineales requieren de un campo \mathbf{E} de gran intensidad.

Como en esta tesis solo estamos interesados en los efectos de segundo orden, de la Ec. (1.16) podemos escribir

$$P_i^{(2)}(2\omega, \mathbf{r}) = \epsilon_0 \chi_{ijk}^{(2)}(2\omega) E_j(\omega, \mathbf{r}) E_k(\omega, \mathbf{r}), \quad (1.19)$$

donde los índices ijk se refieren a las componentes cartesianas de los campos, y se suman si están repetidos; la dependencia en \mathbf{r} se ha mostrado explícitamente.

1.2.1. Efectos de la simetría en la Generación de Segundo

Armónico.

Un material centrosimétrico, posee un centro de inversión, tal que para cada punto \mathbf{r} existe un punto idéntico localizado en $-\mathbf{r}$. Este hecho los podemos escribir en la Ec. (1.19)

$$\begin{aligned}
 P_i^{(2)}(2\omega, \mathbf{r}) &= \epsilon_0 \chi_{ijk}^{(2)}(2\omega) E_j(\omega, \mathbf{r}) E_k(\omega, \mathbf{r}), \\
 \mathbf{r} &\rightarrow -\mathbf{r} \\
 P_i^{(2)}(2\omega, -\mathbf{r}) &= \epsilon_0 \chi_{ijk}^{(2)}(2\omega) E_j(\omega, -\mathbf{r}) E_k(\omega, -\mathbf{r}), \\
 -P_i^{(2)}(2\omega, \mathbf{r}) &= \epsilon_0 \chi_{ijk}^{(2)}(2\omega) (-E_j(\omega, \mathbf{r})) (-E_k(\omega, \mathbf{r})), \\
 P_i^{(2)}(2\omega, \mathbf{r}) &= -\epsilon_0 \chi_{ijk}^{(2)}(2\omega) E_j(\omega, \mathbf{r}) E_k(\omega, \mathbf{r}), \tag{1.20}
 \end{aligned}$$

dado que tanto \mathbf{P} como \mathbf{E} son vectores polares, y por ende cambian de signo ante una inversión de \mathbf{r} , e.g. $\mathbf{E}(-\mathbf{r}) = -\mathbf{E}(\mathbf{r})$ y $\mathbf{P}(-\mathbf{r}) = -\mathbf{P}(\mathbf{r})$. De la primer y última línea de la ecuación anterior obtenemos que

$$\chi_{ijk}^{(2)}(2\omega)[\mathbf{r}] = -\chi_{ijk}^{(2)}(2\omega)[-\mathbf{r}], \tag{1.21}$$

pero como el sistema es centrosimétrico, la respuesta de éste debe de ser idéntica si estamos en \mathbf{r} on en $-\mathbf{r}$, por cual concluimos que

$$\chi_{ijk}^{(2)}(2\omega) = 0 \quad \text{sistema centrosimétrico,} \tag{1.22}$$

Es decir, todos los procesos no lineales de segundo orden no son permitidos en materiales centrosimétricos Existen contribuciones debidas a la generación de segundo armónico en la superficie de materiales centrosimétricos, donde esta simetría precisamente se rompe y empiezan a tener lugar los efectos de segundo orden. Del mismo modo, cualquier otro método que logre romper la simetría del sistema, permitirá que se produzca un efecto no lineal de segundo orden, en específico, la generación de segundo armónico. Debido a que existe una fuerte contribución al segundo armónico en la superficie, es posible utilizar este efecto como

1. INTRODUCCIÓN.

una herramienta para analizar superficies e interfaces [16]. En general $\chi^{(2)}$ es un tensor de tercer orden con 27 elementos. Cada uno de estos elementos podrá ser diferente de cero, aunque la cantidad de términos que son diferentes de cero varían con las propiedades de simetría del medio. La generación de segundo armónico tiene una permutación intrínseca de la simetría para los campos entrantes tal que $\chi_{ijk}^{(2)} = \chi_{ikj}^{(2)}$, lo que reduce el número de elementos diferentes de cero de 27 a 18. Aún así, la simetría del sistema puede ayudarnos a reducir el número de elementos que deben ser calculados como se verá más adelante.

2 CÁLCULO DE PROPIEDADES ÓPTICAS DE METAMATERIALES.

Sumario

2.1. Respuesta macroscópica en metamateriales nanoestructurados.	10
2.1.1. Teoría General.	10
2.1.2. Sistemas Binarios Periódicos.	12
2.1.3. Método Recursivo de Haydock.	14
2.2. Modelo Dipolar para GSA.	16
2.3. Campo Eléctrico.	18

En este capítulo, se formula el procedimiento para calcular las propiedades ópticas de metamateriales, en concreto estamos interesados en la la generación de segundo armónico, que viene dada por $\chi(2\omega)$. Mostraremos un breve repaso donde se describe como se calculan las propiedades lineales utilizando el método de homegenización del campo utilizado en la Ref. [17], además de explicar brevemente el método de recursión de Haydock [18], parte medular en la rapidez de los cálculos; este método permite realizar cálculos de propiedades ópticas, significativamente más rápidos que con otros métodos.

2.1. Respuesta macroscópica en metamateriales nanoestructurados.

Cuándo la luz se propaga dentro de un material homogéneo se puede caracterizar por su respuesta electromagnética promedio. Típicamente, los efectos magnéticos son despreciables en el régimen óptico, es así que basta con conocer la respuesta dieléctrica para estudiar el comportamiento de la luz dentro del material. Cuándo se tiene un metamaterial, cuyos componentes tienen una función dieléctrica bien definida, también es posible calcular la respuesta dieléctrica macroscópica del mismo, sin que esta corresponda necesariamente a una combinación trivial de las funciones dieléctricas de los materiales constituyentes. A continuación, presentamos un método para calcular la respuesta dieléctrica macroscópica en un metamaterial.

2.1.1. Teoría General.

Consideramos un sistema inhomogéneo que se caracteriza por su respuesta dieléctrica microscópica $\hat{\epsilon}$, definida a través de la ecuación constitutiva $\mathbf{D} = \hat{\epsilon}\mathbf{E}$, donde \mathbf{D} y \mathbf{E} corresponden al vector de desplazamiento eléctrico y al campo eléctrico *microscópicos*. Se designan como campos microscópicos debido a sus fluctuaciones espaciales que provienen de la inhomogeneidad del sistema. El objetivo es entonces, obtener la respuesta macroscópica, relacionando los campos macroscópicos de los cuales las fluctuaciones han sido removidas [19].

Utilizando $\mathbf{F}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{F}(\mathbf{r})e^{i\omega t}$, para los campos, obtenemos de la ecuación de onda, Ec. (1.13), que

$$\hat{\mathcal{W}}\mathbf{E} = \frac{4\pi}{iqc}\mathbf{J}^{\text{ext}} \quad (2.1)$$

donde

$$\hat{\mathcal{W}} = \hat{\epsilon} + \frac{1}{q^2}\nabla \times \nabla \times = \hat{\epsilon} + \frac{1}{q^2}\nabla^2\hat{\mathcal{P}}^T \quad (2.2)$$

es el *operador de onda*, $q = \omega/c$ es el número de onda de la luz en el vacío, ω es la frecuencia, c la velocidad de la luz en el vacío y \mathbf{J} es la densidad de corriente externa. Se ha introducido el proyector transversal $\hat{\mathcal{P}}^T$, mismo que nos da la proyección transversal de un campo \mathbf{F} , $\mathbf{F}^T = \hat{\mathcal{P}}^T \mathbf{F}$. Por completez, se introduce el proyector longitudinal $\hat{\mathcal{P}}^L$ de manera que $\hat{\mathcal{P}}^L + \hat{\mathcal{P}}^T = \hat{1}$, con $\hat{1}$ el operador identidad. La Ec. (2.1) contiene ambas partes, transversal y longitudinal. Resolviendo formalmente la Ec. (2.1) para obtener \mathbf{E} , encontramos que

$$\mathbf{E} = \frac{4\pi c}{iq} \hat{\mathcal{W}}^{-1} \mathbf{J}^{\text{ext}}. \quad (2.3)$$

Como estamos interesados en calcular la respuesta macroscópica del sistema, introducimos un proyector de promedio $\hat{\mathcal{P}}_a$ y uno más de fluctuaciones $\hat{\mathcal{P}}_f$, tales que un campo arbitrario pueda escribirse como $\mathbf{F} = \mathbf{F}_a + \mathbf{F}_f$ con $\mathbf{F}_a = \hat{\mathcal{P}}_a \mathbf{F}$ el promedio y $\mathbf{F}_f = \hat{\mathcal{P}}_f \mathbf{F}$ su parte fluctuante, así podemos identificar el campo promedio con la parte macroscópica del campo $\mathbf{F}_a \equiv \mathbf{F}_M$. Por el momento solo se sabe que estos proyectores son idempotentes $\hat{\mathcal{P}}_a^2 = \hat{\mathcal{P}}_a$, $\hat{\mathcal{P}}_f^2 = \hat{\mathcal{P}}_f$, es decir, el promedio del promedio es el promedio, y las fluctuaciones de las fluctuaciones son las fluctuaciones [19]. Además de esto $\hat{\mathcal{P}}_a \hat{\mathcal{P}}_f = \hat{\mathcal{P}}_f \hat{\mathcal{P}}_a = 0$ y $\hat{\mathcal{P}}_a + \hat{\mathcal{P}}_f = \hat{1}$, también suponemos que la corriente externa no tiene fluctuaciones espaciales, es decir $\mathbf{J}_f^{\text{ext}} = \mathbf{0}$ y $\mathbf{J}^{\text{ext}} = \mathbf{J}^M = \hat{\mathcal{P}}_a \mathbf{J}^M$. De esta manera si aplicamos el operador $\hat{\mathcal{P}}_a$ en la Ec. (2.3),

$$\begin{aligned} \hat{\mathcal{P}}_a \left[\mathbf{E} = \frac{4\pi}{iqc} \hat{\mathcal{W}}^{-1} \mathbf{J}^{\text{ext}} \right] \\ \hat{\mathcal{P}}_a \mathbf{E} = \frac{4\pi}{iqc} \hat{\mathcal{P}}_a \hat{\mathcal{W}}^{-1} (\hat{\mathcal{P}}_a + \hat{\mathcal{P}}_f) \mathbf{J}^{\text{ext}} \\ \mathbf{E}_M = \frac{4\pi}{iqc} \hat{\mathcal{W}}_M^{-1} \mathbf{J}^M, \end{aligned} \quad (2.4)$$

dado que $\hat{\mathcal{P}}_a + \hat{\mathcal{P}}_f = 1$ y definimos

$$\hat{\mathcal{W}}_M^{-1} \equiv \hat{\mathcal{P}}_a \hat{\mathcal{W}}^{-1} \hat{\mathcal{P}}_a, \quad (2.5)$$

generando así una ecuación para el campo eléctrico macroscópico, que se relaciona con el operador de onda macroscópico $\hat{\mathcal{W}}_M$, que de la Ec. (2.2)

$$\hat{\mathcal{W}}_M = \hat{\epsilon}^M + \frac{1}{q^2} \nabla^2 \hat{\mathcal{P}}_a \hat{\mathcal{P}}^T, \quad (2.6)$$

con $\hat{\epsilon}_M$, la respuesta dieléctrica macroscópica del sistema. Estos resultados pueden ser fácilmente generalizados a otras situaciones y otro tipo de respuestas. El procedimiento consiste en primero identificar la respuesta, es nuestro caso $\hat{\mathcal{W}}^{-1}$ a una perturbación externa, i.e. \mathbf{J}^{ext} y entonces promediar la respuesta para obtener la parte macroscópica correspondiente $\hat{\mathcal{W}}_M^{-1}$, lo que está relacionado con la respuesta deseada, es decir $\hat{\epsilon}^M$.

2.1.2. Sistemas Binarios Periódicos.

Usaremos la Ec. (2.6) para obtener las propiedades ópticas de un metamaterial hecho con dos materiales a y b con funciones dieléctricas $\epsilon_a(\omega)$ y $\epsilon_b(\omega)$ respectivamente. Asumimos que ambos medios son isotrópicos y homogéneos, esto quiere decir que $\epsilon_a(\omega)$ y $\epsilon_b(\omega)$ son funciones escalares complejas que dependen exclusivamente de la frecuencia y que son obtenidas de mediciones experimentales o de modelos bien establecidos [20].

Un sistema periódico, a lo largo de xy , es el que se muestra en la Fig. (2.1), donde se tiene un material a , que llamamos el anfitrión, es centrosimétrico, y esta descrito por la función dieléctrica $\epsilon_a(\omega)$. En el anfitrión se tienen inclusiones de un material b descrito por una función dieléctrica $\epsilon_b(\omega)$, que en este trabajo tomaremos como una constante real, sin pérdida de generalidad en la formulación. Se hace énfasis en que el sistema es invariante a lo largo de la dirección perpendicular, que tomamos como z .

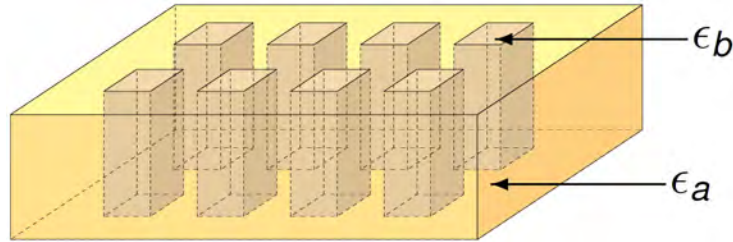


Figura 2.1: Esquema de un metamaterial hecho con un material descrito por $\epsilon_a(\omega)$ con inclusiones de un material descrito por $\epsilon_b(\omega)$. El sistema es invariante a lo largo de z y periódico en xy .

Para describir completamente lo que pasa en cada parte del metamaterial introducimos

la función característica $B(\mathbf{r})$, donde esta toma el valor de $B(\mathbf{r}) = 1$, para cualquier punto \mathbf{r} en la región b ocupada por la inclusión, y $B(\mathbf{r}) = 0$ en cualquier otro lado, esto es, en el anfitrión. Así, podemos escribir la respuesta dieléctrica microscópica como

$$\epsilon(\mathbf{r}) = \frac{\epsilon_a}{u} (u - B(\mathbf{r})), \quad (2.7)$$

donde definimos la función espectral $u = 1/(1 - \epsilon_b/\epsilon_a)$ [21]; omitimos la dependencia en ω por simplicidad de escritura. De esta forma, el operador de onda microscópico de la Ec. (2.2) podemos escribirlo como

$$\hat{\mathcal{W}} = \frac{\epsilon_a}{u} (u\hat{g}^{-1} - \hat{\mathcal{B}}), \quad (2.8)$$

donde el operador característico $\hat{\mathcal{B}}$ corresponde a la multiplicación por $B(\mathbf{r})$ en el espacio real y definimos

$$\hat{g} \equiv \left(1 + \frac{\nabla^2 \hat{\mathcal{P}}^T}{q^2 \epsilon_a}\right)^{-1}. \quad (2.9)$$

Usando la Ec. (2.8) reescribimos la Ec. (2.5) como

$$\hat{\mathcal{W}}_M^{-1} = \frac{u}{\epsilon_a} \hat{g}_{aa} (u - \hat{\mathcal{B}}\hat{g})_{aa}^{-1}, \quad (2.10)$$

donde \hat{g} no está acoplado con las fluctuaciones de los campos. Usando el Teorema de Bloch [22], consideramos un campo eléctrico de la forma

$$\mathbf{E}_{\mathbf{k}}(\mathbf{r}) = \sum_{\mathbf{G}} \mathbf{E}_{\mathbf{G}} e^{i(\mathbf{k}+\mathbf{G})\cdot\mathbf{r}}, \quad (2.11)$$

donde \mathbf{k} es el vector de onda dado, $\{\mathbf{G}\}$ es la red recíproca de nuestro material y los coeficientes $\mathbf{E}_{\mathbf{G}}$ representan el campo en el espacio recíproco. En esta representación, todos los operadores pueden ser escritos como matrices con pares de índices vectoriales \mathbf{G}, \mathbf{G}' , además de los otros índices posibles, como los Cartesianos. Así, representamos el proyector longitudinal como la matriz

$$\mathcal{P}_{\mathbf{G}\mathbf{G}'}^L = \delta_{\mathbf{G}\mathbf{G}'} \frac{(\mathbf{k} + \mathbf{G}) \cdot (\mathbf{k} + \mathbf{G}')}{|\mathbf{k} + \mathbf{G}| |\mathbf{k} + \mathbf{G}'|} \quad (2.12)$$

con $\delta_{\mathbf{G}\mathbf{G}'}$ la delta de Kronecker, así el proyector transversal se convierte en $\mathcal{P}_{\mathbf{G}\mathbf{G}'}^T = \mathbf{1}\delta_{\mathbf{G}\mathbf{G}'} - \mathcal{P}_{\mathbf{G}\mathbf{G}'}^L$ con $\mathbf{1}$ la matriz identidad Cartesiana. El operador Laplaciano en el espacio recíproco es

$$\nabla^2 \rightarrow -(\mathbf{k} + \mathbf{G})^2 \delta_{\mathbf{G}\mathbf{G}'}, \quad (2.13)$$

y podemos definir el proyector promedio como un corte en el espacio recíproco

$$(\mathcal{P}_a)_{\mathbf{G}\mathbf{G}'} = \delta_{\mathbf{G}\mathbf{0}}\delta_{\mathbf{G}'\mathbf{0}}, \quad (2.14)$$

de modo que los campos promedio simplemente mantienen la contribución con el vector de onda \mathbf{k} mientras que los otros vectores de onda son filtrados. Como se mostró en la Ec. (2.10), solo requerimos

$$(u - \hat{\mathcal{B}}\hat{g})_{aa}^{-1} = (u - \hat{\mathcal{B}}\hat{g})_{\mathbf{0}\mathbf{0}}^{-1} \quad (2.15)$$

para obtener el inverso del operador de onda macroscópico, donde los subíndices $\mathbf{0}$ denotan la proyección en el subespacio con $\mathbf{G} = \mathbf{0}$.

2.1.3. Método Recursivo de Haydock.

Se puede hacer un análogo de la Ec. (2.15) con la función de Green correspondiente a un Hamiltoniano $\hat{\mathcal{H}}$, de la forma [18]

$$\hat{\mathcal{G}}(\varepsilon) = (\varepsilon - \hat{\mathcal{H}})^{-1}, \quad (2.16)$$

donde podemos identificar a $\hat{\mathcal{H}} \rightarrow \hat{\mathcal{B}}\hat{g}$ que es la proyección longitudinal de la función característica y $\varepsilon \rightarrow u$. De forma que, para encontrar la proyección de la función de Green sobre un estado $|\hat{a}\rangle$ basta con obtener

$$(u - \hat{\mathcal{B}}\hat{g})_{aa}^{-1} \rightarrow \langle a|(u - \hat{\mathcal{B}}\hat{g})^{-1}|a\rangle \quad (2.17)$$

que es el operador de Green correspondiente a algún Hamiltoniano $\hat{\mathcal{H}}$ que además es Hermitiano y ε es alguna energía compleja [13], donde el Hamiltoniano se puede identificar como la

proyección longitudinal de la función característica $\hat{\mathcal{B}}^{LL}$, la energía ε con la variable espectral u , lo que muestra que la correspondiente función de Green es proporcional al inverso de la función dieléctrica longitudinal macroscópica. El método de Haydock [18] puede aplicarse para obtener la función de Green proyectada de una manera muy eficiente, y se ha adaptado al cálculo de respuesta ópticas de sistemas nanoestructurados.

De acuerdo con la Ec. (2.10), necesitamos el promedio $(u - \hat{\mathcal{B}}\hat{g})_{aa}^{-1} = \langle a|(u - \hat{\mathcal{B}}\hat{g})^{-1}|a\rangle$, donde hemos proyectado sobre un estado promedio $|a\rangle = b_0|0\rangle$ que consiste en una onda plana con un vector de onda \mathbf{k} dado, frecuencia ω y polarización \mathbf{e} . Ahora, definimos $b_0 \equiv 0$ y obtenemos nuevos estados mediante la relación de recursión

$$|\widetilde{n+1}\rangle \equiv \hat{\mathcal{B}}\hat{g}|n\rangle = b_{n+1}|n+1\rangle + a_n|n\rangle + g_{n-1}g_nb_n|n-1\rangle \quad (2.18)$$

donde los estados $\{|n\rangle\}$ están normalizados de acuerdo a la métrica \hat{g} , esto es

$$\langle n|\hat{g}|m\rangle = g_n\delta_{nm}, \quad (2.19)$$

donde $g_n = \pm 1$ y δ_{nm} es la delta de Kronecker. El requerimiento de ortonormalización produce los coeficientes de Haydock generalizados a_n , b_{n+1} , y g_{n+1} dados de los coeficientes previos b_n , g_n y g_{n-1} . de manera que a_n es obtenido de

$$\langle n|\hat{g}|\widetilde{n+1}\rangle = a_ng_n, \quad (2.20)$$

y b_{n+1} de

$$\langle \widetilde{n+1}|\hat{g}|\widetilde{n+1}\rangle = g_{n+1}b_{n+1}^2 + g_n a_n^2 + g_{n-1}b_{n-1}^2, \quad (2.21)$$

donde hemos escogido el signo $g_{n+1} = \pm 1$ para que b_{n+1}^2 sea positivo y podamos escoger b_{n+1} como un número real. En la base $\{|n\rangle\}$, $\hat{\mathcal{B}}\hat{g}$ esta representado por una matriz tridiagonal con a_n a lo largo de la diagonal principal, b_n a lo largo de la subdiagonal y $g_{n-1}g_nb_n$ a lo largo de

la supradiagonal, esto es

$$u - \hat{\mathcal{B}}\hat{g} \rightarrow \begin{pmatrix} u - a_0 & -b_1 g_1 g_0 & 0 & 0 & \cdots \\ -b_1 & u - a_1 & -b_2 g_2 g_1 & 0 & \cdots \\ 0 & -b_2 & u - a_2 & -b_3 g_3 g_2 & \cdots \\ \vdots & \vdots & & \vdots & \ddots \end{pmatrix}. \quad (2.22)$$

De acuerdo con la Ec. (2.10), no requerimos invertir completamente la matriz (2.22), solo necesitamos los elementos en la primera fila y primera columna. De manera tal que estos elementos se pueden obtener como una fracción continua, los cuales se sustituyen en la Ec. (2.10), lo que nos da Ec. (2.10)

$$\mathcal{W}_M^{-1} = \frac{u}{\epsilon_A} \frac{g_0 b_0^2}{u - a_0 - \frac{g_0 g_1 b_1^2}{u - a_1 - \frac{g_1 g_2 b_2^2}{u - a_2 - \frac{g_2 g_3 b_3^2}{\ddots}}}}, \quad (2.23)$$

y finalmente de la Ec. (2.6) obtenemos que

$$\epsilon_{ij}^M(\omega, \mathbf{k}) = \frac{1}{q^2} (k^2 \delta_{ij} - k_i k_j) + \mathcal{W}_{ij}^M(\omega, \mathbf{k}). \quad (2.24)$$

Las Ecs. (2.23) y (2.25) corresponden a los resultados principales de este formalismo. Notando que en general, este tensor dieléctrico puede depender de ω y \mathbf{k} , esto es, una función de respuesta temporal y espacialmente dispersiva. Para el cálculo no retardado que implica longitud de onda larga, i.e. $\lambda > a$, tenemos que $\hat{g} = 1$ y en el límite local, necesario para calcular las propiedades ópticas, requerimos que $\mathbf{k} = 0$, con lo que

$$\epsilon_{ij}^M(\omega, \mathbf{k}) = \mathcal{W}_{ij}^M(\omega, \mathbf{k}), \quad (2.25)$$

donde ij son índices Cartesianos.

2.2. Modelo Dipolar para GSA.

En esta sección utilizamos el modelo de la Ref. [23] para calcular la generación del segundo armónico en un metamaterial y de ahí su polarizabilidad no lineal de segundo orden, $\chi^{(2)}(2\omega)$,

como se vió en el Capítulo 1.

El modelo considera un sistema macroscópico de entidades polarizables caracterizadas por su momento dipolar no lineal $\mathbf{p}(2\omega, \mathbf{r})$ que viene dado por [23]

$$\mathbf{p}(2\omega, \mathbf{r}) = -\frac{1}{2e}\alpha(\omega)\alpha(2\omega)\left[\nabla E^2(\omega, \mathbf{r}) - 4\mathbf{E}(\omega, \mathbf{r}) \times (\nabla \times \mathbf{E}(\omega, \mathbf{r}))\right], \quad (2.26)$$

y sus momentos cuadrupolares,

$$\mathbf{Q}(2\omega, \mathbf{r}) = -\frac{1}{2}\alpha(\omega)^2\mathbf{E}(\omega, \mathbf{r})\mathbf{E}(\omega, \mathbf{r}), \quad (2.27)$$

que responden al campo eléctrico $\mathbf{E}(\omega, \mathbf{r})$, donde $\alpha(\omega)$ y $\alpha(2\omega)$ son las polarizabilidades a la frecuencia ω y 2ω respectivamente, que son las de un oscilador armónico amortiguado,

$$\alpha(\omega) = \frac{e^2/m}{\omega_0^2 - \omega^2 - i\omega/\tau}, \quad (2.28)$$

con τ la constante de amortiguamiento. También,

$$\epsilon(\omega) = 1 + 4\pi n^B \alpha(\omega), \quad (2.29)$$

es la función dieléctrica de las unidades polarizables, con n^B su densidad por unidad de volumen. Ignorando el retardamiento, podemos expresar la polarización no lineal macroscópica como

$$\mathbf{P}(2\omega, \mathbf{r}) = n(\mathbf{r})\mathbf{p}(2\omega, \mathbf{r}) - \frac{1}{2}\nabla \cdot (n(\mathbf{r})\mathbf{Q}(2\omega, \mathbf{r})) \quad (2.30)$$

con $n(\mathbf{r})$ la densidad de entidades polarizables. Para el metamaterial esta $n(\mathbf{r})$ toma los valores correspondientes para el anfitrión y las inclusiones. De tal manera que la polarización no lineal total será

$$\mathbf{P}_i^M(2\omega) = \frac{1}{A} \int d\mathbf{r} \mathbf{P}_i^M(2\omega, \mathbf{r}) \equiv \chi_{ijk}^{(2)}(2\omega) E_j(\omega) E_k(\omega), \quad (2.31)$$

con A el area de la celda unitaria del metamaterial y $\chi_{ijk}^{(2)}(2\omega)$ su susceptibilidad no lineal de segundo orden que modula la GSA. Como el sistema es invariante a lo largo de z , la integral es sobre $\mathbf{r} = (x, y)$. Para obtener $\chi_{ijk}^{(2)}(2\omega)$ debemos de conocer el campo lineal, $\mathbf{E}(\omega, \mathbf{r})$, que podemos obtener del método presentado en la sección anterior.

2.3. Campo Eléctrico.

Podemos identificar a las proyecciones de los campos eléctricos como

$$\mathbf{D}_L = \hat{\epsilon}_{LL} \mathbf{E}_L, \quad (2.32)$$

que es la ecuación constitutiva para \mathbf{E}_L y de la cual obtendremos la parte macroscópica resolviendo la ecuación para este campo, donde L es la proyección longitudinal. Procediendo entonces a resolver para \mathbf{E}_L obtenemos

$$\mathbf{E}_L = (\hat{\epsilon}_{LL})^{-1} \mathbf{D}_L, \quad (2.33)$$

donde la homegenización de este campo eléctrico microscópico, da

$$\mathbf{E}_L^M = (\hat{\epsilon}_{LL})_{aa}^{-1} \mathbf{D}_L^M. \quad (2.34)$$

De la sección 2.1.3, uno puede demostrar que para obtener el campo eléctrico se debe de resolver la siguiente ecuación

$$\begin{pmatrix} \mathbf{D}_0 \\ \mathbf{0} \\ \vdots \\ \mathbf{0} \end{pmatrix} = \frac{\epsilon_A}{u} \begin{pmatrix} u - a_0 & -b_1 & 0 & 0 & \cdots & 0 \\ -b_1 & u - a_1 & -b_2 & 0 & \cdots & 0 \\ 0 & -b_2 & u - a_2 & -b_3 & \cdots & 0 \\ \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ 0 & 0 & 0 & 0 & -b_{N-1} & u - a_N \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} \mathbf{E}_0 \\ \mathbf{E}_1 \\ \vdots \\ \mathbf{E}_N \end{pmatrix} \quad (2.35)$$

de donde podemos calcular cada uno de los campos \mathbf{E}_{n-1} como

$$\mathbf{E}_{n-1} = \frac{(u - a_n) \mathbf{E}_n - b_{n+1} \mathbf{E}_{n+1}}{b_n}, \quad (2.36)$$

para finalmente obtener

$$(u - a_0) \mathbf{E}_0 - b_1 \mathbf{E}_1 = \frac{u}{\epsilon_A} \mathbf{D}_0 = \frac{u}{\epsilon_A} \boldsymbol{\epsilon}^M \cdot \mathbf{E}_0. \quad (2.37)$$

Si utilizamos la representación de Haydock para describir al campo eléctrico en el espacio recíproco, \mathbf{E}_G será

$$\mathbf{E}_G = \sum_n \mathbf{E}_n \hat{\mathbf{G}} \langle \mathbf{G} | n \rangle, \quad (2.38)$$

donde los \mathbf{E}_n ya fueron calculados mediante (2.35), de manera que bastará con aplicar la transformada inversa de Fourier a \mathbf{E}_G para obtener $\mathbf{E}(\mathbf{r})$, con el cual podemos calcular $\chi_{ijk}^{(2)}(2\omega)$.

3 RESULTADOS.

Sumario

3.1. Cálculo de $\chi_{ijk}^{(2)}(2\omega)$ con inclusiones de vacío en plata, con fracción de llenado = 0.035.	20
3.1.1. Cálculo de $\chi_{ijk}^{(2)}(2\omega)$ con inclusiones de vacío en plata, con fracción de llenado = 0.0125.	24
3.1.2. Cálculo de $\chi_{ijk}^{(2)}(2\omega)$ con inclusiones de vacío en plata, con fracción de llenado = 0.068.	28

En este capítulo, se presentarán los resultados obtenidos a partir de los cálculos de segundo armónico realizados en distintas estructuras periódicas. Como ya se ha dicho anteriormente, la GSA depende de la no centrosimetría que tenga el sistema a analizar. El sistema que se analiza es sumamente interesante, ya que con una figura geométrica muy sencilla para la forma de la inclusión, es posible controlar la no centrosimetría del metamaterial. Se muestran cálculos para una celda unitaria cuya inclusión tiene una forma de cruz a lo largo del plano xy . Se varían tanto la forma de la cruz como la fracción de llenado de la misma. Cada caso se describe a fondo en la sección correspondiente. Estas estructuras se realizaron en base de dos materiales, el anfitrión de plata y las inclusiones de vacío. Así que $\epsilon_a(\omega)$ corresponde a la función dieléctrica de la plata que se obtuvo de [24], y $\epsilon_b(\omega) = 1$ que corresponde al

vacío. La fracción de llenado se define como el área de la inclusión dividida entre el área de la celda unitaria. Recordamos que como la teoría desarrollada es válida en la aproximación de longitud de onda larga, se asume que $\lambda > a$.

3.1. Cálculo de $\chi_{ijk}^{(2)}(2\omega)$ con inclusiones de vacío en plata, con fracción de llenado = 0.035.

En este metamaterial se formaron inclusiones de vacío en forma de cruz, tal como se muestra en la Fig. 3.1.

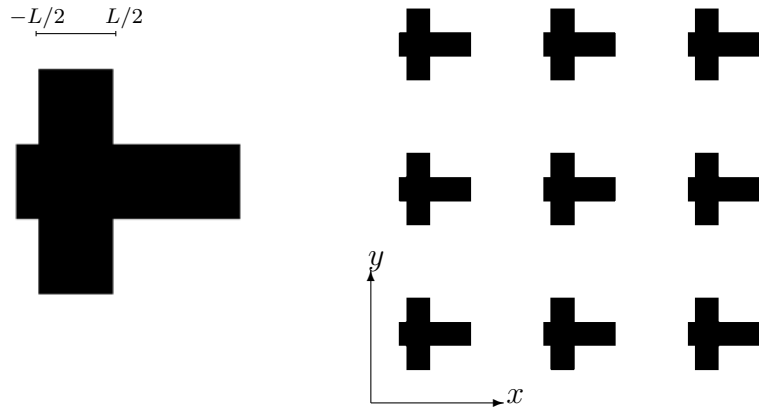


Figura 3.1: Arreglo periódico para las inclusiones de vacío en forma de cruz en un anfitrión de plata con fracción de llenado de = 0.035.

En la parte izquierda de la figura se muestra la celda unitaria creada para realizar un arreglo periódico e infinito en el plano xy , dónde se muestra que el tamaño del rectángulo vertical de la cruz tiene un ancho de L . Se generaron 21 arreglos similares a este, con diferentes disposiciones de la barra vertical que conforma la cruz, esto con el fin de pasar de un arreglo centrosimétrico a uno no-centrosimetrico, simplemente moviendo la posición del punto $-L/2$.

3.1. Cálculo de $\chi_{ijk}^{(2)}(2\omega)$ con inclusiones de vacío en plata, con fracción de llenado = 0.035.

La idea es ir variando la geometría del sistema y ver como cambia $\chi_{ijk}^{(2)}(2\omega)$. La fracción de llenado de esta estructura, es de 0.035, es decir, del total del metamaterial, la mayor parte de este es plata y solo un 3.5% se trata de vacío. Fuera de la situación centrosimétrica y tomando en cuenta que la cruz presenta una simetría de inversión solamente respecto al eje y , se puede obtener que las componentes de $\chi_{ijk}^{(2)}(2\omega)$ diferentes de cero son:

$$\chi_{xxx}^{(2)}(2\omega) \neq \chi_{xyy}^{(2)}(2\omega) \neq \chi_{yyx}^{(2)}(2\omega) \neq 0, \quad (3.1)$$

La Fig. 3.2 se muestra la progresión del comportamiento de $|\chi_{xxx}^{(2)}(2\omega)|$ como función de la energía de la onda incidente en eV , y conforme se desplaza la parte vertical de la cruz hacia la izquierda, de $L/2$ a $-L/2$, rompiendo así la centrosimetría, se presentan dos casos particulares; la parte superior cuándo la inclusión no tiene una parte horizontal del lado izquierdo y la parte inferior de la figura, cuándo la inclusión es completamente en forma de cruz. En la Fig. 3.3, se muestra una animación de $|\chi_{xxx}^{(2)}(2\omega)|$ que puede ser visualizada abriendo el documento `tesis.pdf` con ayuda del **Acrobat Reader**. La parte izquierda de la Fig. 3.3 nos muestra dos recuadros más, uno correspondiente a la celda unitaria de la inclusión creada, dónde la parte en amarillo corresponde al vacío y la parte negra a la plata. La parte de abajo del lado izquierdo de la figura corresponde al mapa de polarización, $|P_i^{(2)}|$, generado por las ondas incidentes en el material, Ec. (1.19). En la animación se puede apreciar claramente, como el rompimiento de la centrosimetría del metamaterial hace que el segundo armónico vaya apareciendo, también es obvio que conforme la celda unitaria se va volviendo menos centrosimétrica, la señal en el segundo armónico debe ser diferente en cada figura. Un efecto interesante es el que sucede cuando la figura cambia abruptamente y deja de tener una parte horizontal del lado izquierdo, en donde además de un cambio en la simetría del sistema, ocurre un cambio en la figura. También, en el mapa de polarización se puede apreciar que la intensidad de $|P_i^{(2)}|$ nunca es igual a cero, a pesar de que para el caso centrosimétrico, $\chi_{xxx}^{(2)}(2\omega) = 0$. Esto se debe precisamente al carácter vectorial de la polarización, ya que al ser una celda unitaria totalmente simétrica, las componentes que se encuentran en (x, y) serán idénticas a las que encontraremos si nos situamos en un punto $(-x, -y)$ y por las

3. RESULTADOS.

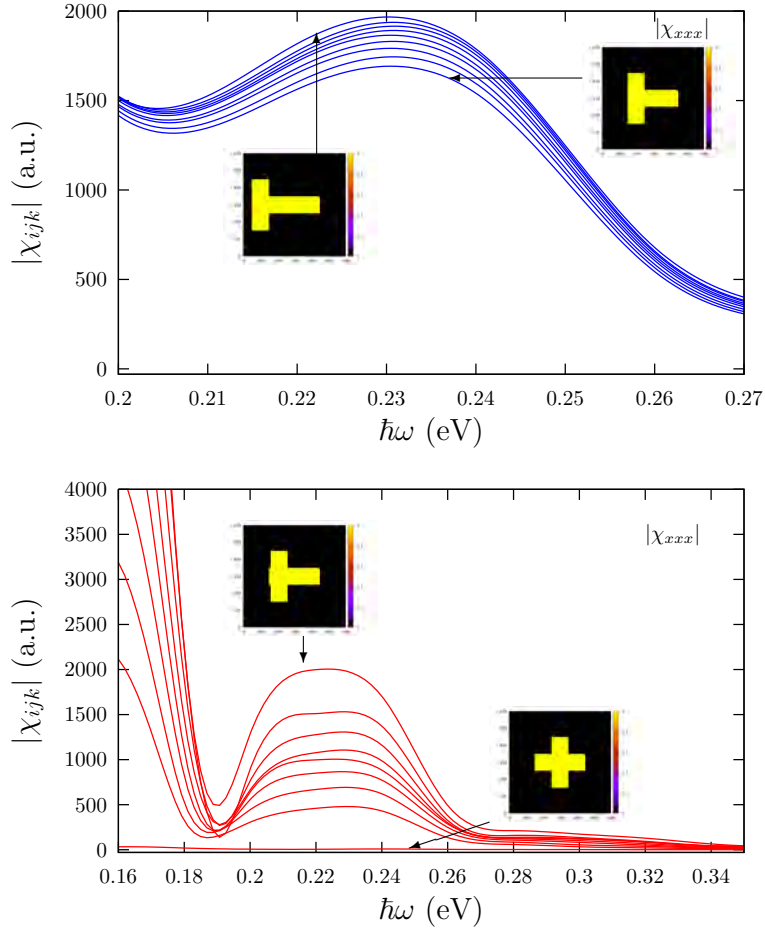


Figura 3.2: Progresión en el comportamiento de $|\chi_{xxx}^{(2)}(2\omega)|$.

consideraciones de simetría antes mencionadas el capítulo (1), $\mathbf{P}^{(2)}(-\mathbf{r}) = -\mathbf{P}^{(2)}(\mathbf{r})$, y al sumar sobre toda \mathbf{r} , $\chi_{ijk}^{(2)}(2\omega) = 0$, para todos las combinaciones de ijk presentadas en la Ec. (3.1)

En la Fig. (3.4) se muestra una comparación entre las componentes diferentes de cero para la inclusión que se muestra en la parte izquierda de la figura.

3.1. Cálculo de $\chi_{ijk}^{(2)}(2\omega)$ con inclusiones de vacío en plata, con fracción de llenado = 0.035.

Figura 3.3: Animación para $|\chi_{xxx}^{(2)}(2\omega)|$ como función de la frecuencia del campo incidente. Abrir tesis.pdf con ayuda del Acrobat Reader.

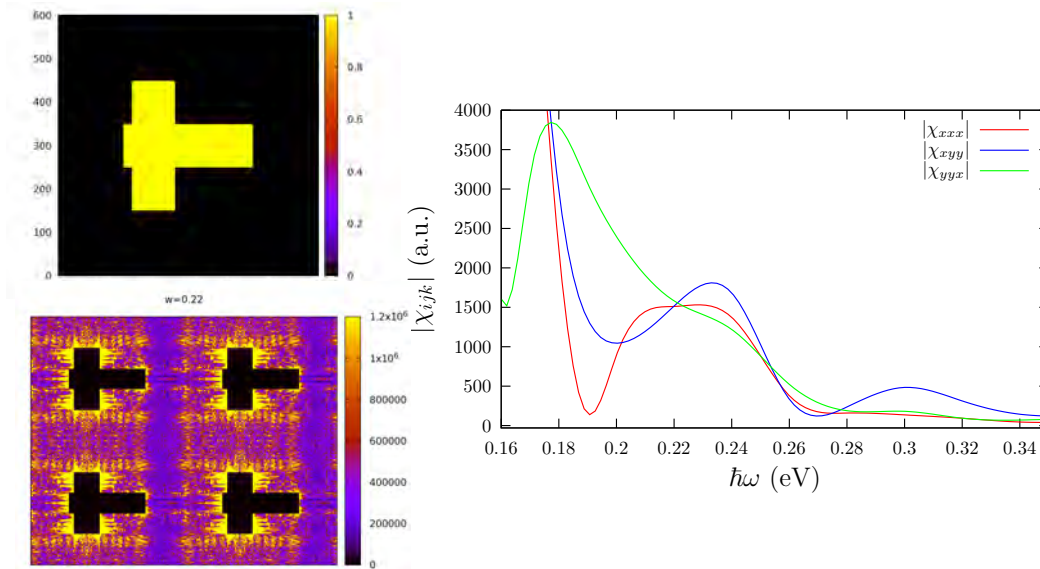


Figura 3.4: Componentes diferentes de cero para la susceptibilidad no lineal.

Como se puede observar, existe una respuesta no lineal diferente de cero con una intensidad similar en el mismo rango del espectro para las componentes xxx y xyy . Una mayor respuesta no lineal de segundo orden se presenta para la componente yyx en comparación con las componentes anteriores, solo que en un espectro de la energía menor a los anteriores. Esto nos proporciona un resultado sumamente interesante que se discute a continuación. La polarización no lineal depende de la dirección del campo eléctrico que incide sobre el metamaterial. Para este caso las componentes del campo eléctrico que contribuye a la componente yyx de la susceptibilidad son una combinación de campos eléctricos, lo que quiere decir que deberán ser campos en dirección x y y respectivamente. Así para la componente xxx sólo es necesario mandar un campo eléctrico en la dirección x . El cálculo hecho en el rango de frecuencias dado, es de gran interés desde el punto de vista tecnológico, ya que hasta el momento no se tiene reportado que existan dobladores de frecuencia en esta región. Se menciona que en todos los resultados la parte baja de los espectros mostrados tienen una subida muy pronunciada en $|\chi_{ijk}^{(2)}(2\omega)|$ que proviene del hecho de que a bajas energías la plata se comporta como un metal de Drude, y su función dieléctrica diverge para $\hbar\omega = 0$, lo que hace que $|\chi_{ijk}^{(2)}(2\omega)|$ crezca. Sin embargo este comportamiento no puede ser modificado con la geometría de las inclusiones y por ende no es susceptible de ser controlado; así que no es de interés para esta tesis.

3.1.1. Cálculo de $\chi_{ijk}^{(2)}(2\omega)$ con inclusiones de vacío en plata, con fracción de llenado = 0.0125.

A continuación, se muestran los cálculos hechos para un arreglo periódico como el que se muestra en la Fig. 3.5. Dicho arreglo, consistió en figuras de la misma forma que las de la sección anterior, para las cuáles se modificó su tamaño, esta vez el área que ocupan las inclusiones de vacío es mas pequeña que en el caso anterior (1.25 % del total del material). La idea de ir haciendo estas modificaciones, es también analizar la dependencia de $\chi_{ijk}^{(2)}(2\omega)$,

3.1. Cálculo de $\chi_{ijk}^{(2)}(2\omega)$ con inclusiones de vacío en plata, con fracción de llenado = 0.035.

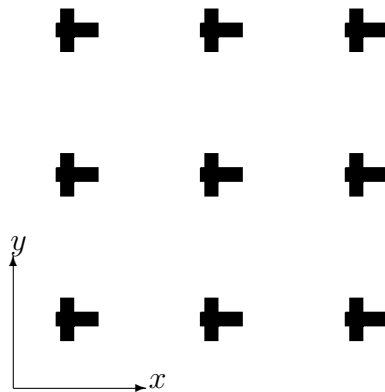


Figura 3.5: Arreglo periódico para las inclusiones de vacío en la plata para formas en cruz con una fracción de llenado = 0.0125.

con el tamaño de las inclusiones, o de forma más general, la fracción de llenado. En la Fig. 3.6 y Fig. 3.7 se muestra el comportamiento de $|\chi_{xxx}^{(2)}(2\omega)|$ para estas celdas unitarias. Como se puede observar la intensidad de $|\chi_{xxx}^{(2)}(2\omega)|$ respecto a la celda unitaria de la sección anterior, es mayor, aunque se sigue presentando en el mismo rango de frecuencias. Esto se debe principalmente a que el material se hace menos homogéneo, las variaciones entre un material y otro son más abruptas lo que supone una variación más “rápida” en la centrosimetría del sistema. Respecto al cálculo anterior se agregaron tres figuras nuevas, donde en una parte del cálculo, se separan por completo las dos partes que componen la cruz. Esta separación produce que aparezcan dos máximos locales para dos frecuencias distintas en una misma forma de la inclusión. Lo que podemos concluir de este resultado es que con esta forma geométrica, podríamos generar segundo armónico en dos puntos diferentes del espectro. Por último en la Fig. 3.8 se muestra una comparación entre las componentes diferentes de cero para este caso, con el respectivo mapa de polarización para la más intensa de ellas, que en este caso es $\chi_{xxx}^{(2)}$.

3. RESULTADOS.

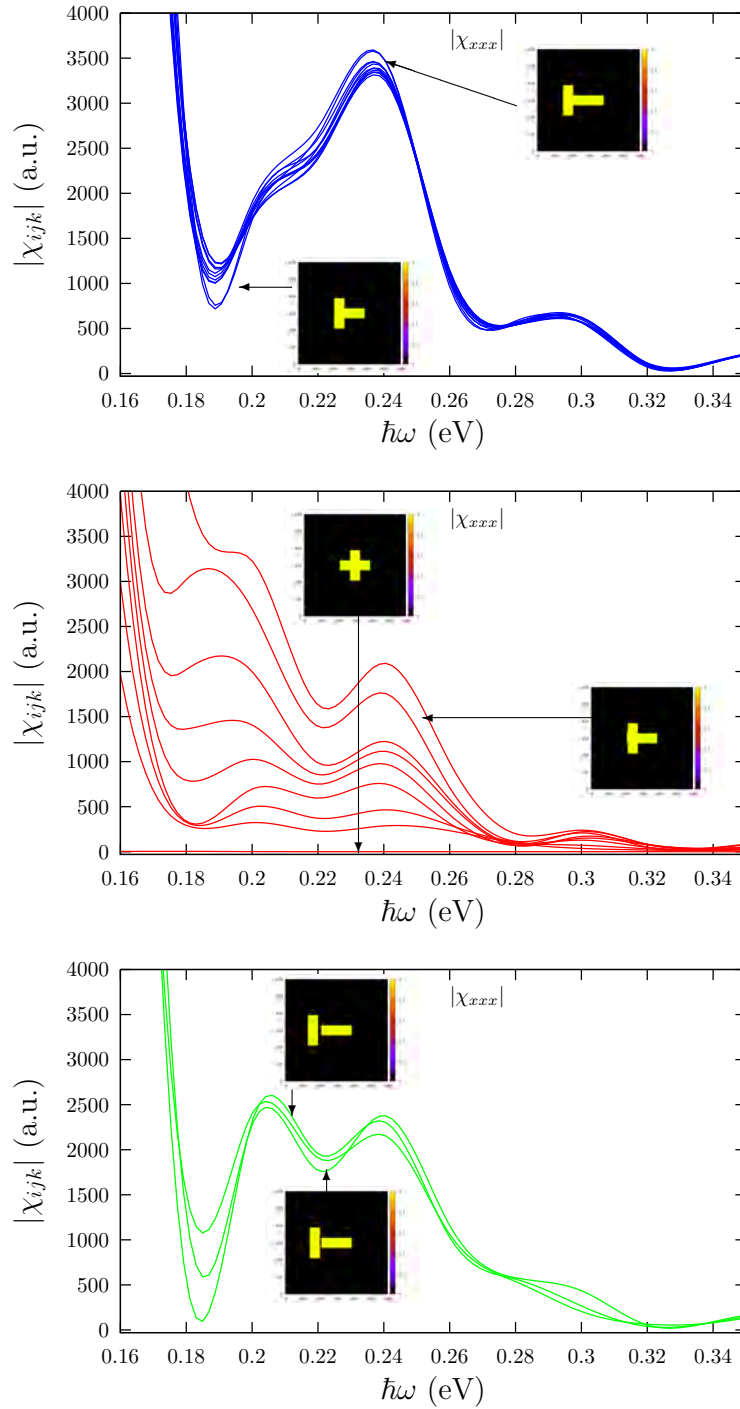


Figura 3.6: Progresión en el comportamiento de $|\chi_{xxx}^{(2)}(2\omega)|$.

3.1. Cálculo de $\chi_{ijk}^{(2)}(2\omega)$ con inclusiones de vacío en plata, con fracción de llenado = 0.035.

Figura 3.7: Animación para $|\chi_{xxx}^{(2)}(2\omega)|$ como función de la frecuencia del campo incidente. Abrir tesis.pdf con ayuda del Acrobat Reader.

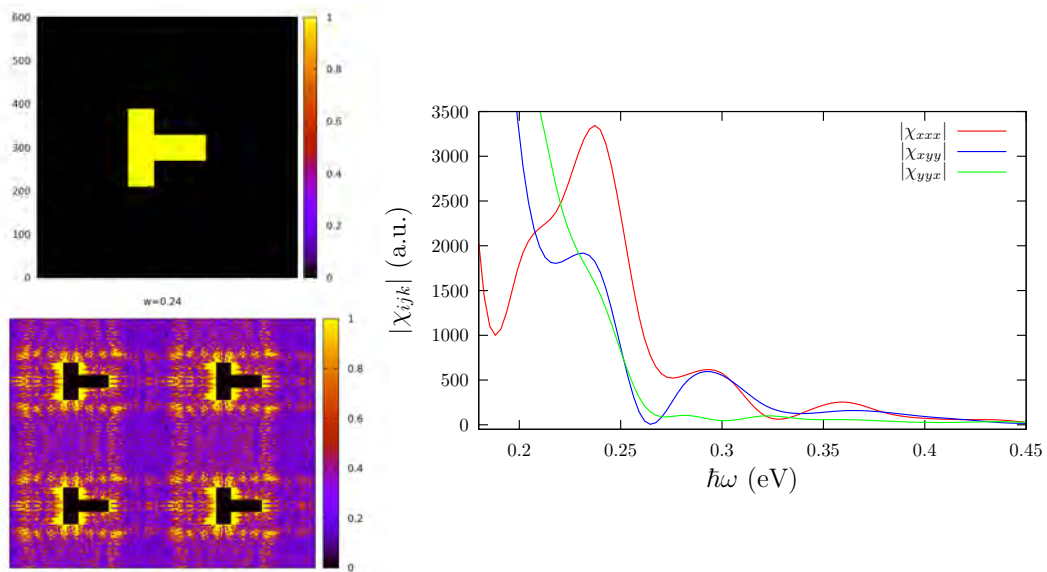


Figura 3.8: Componentes diferentes de cero para la susceptibilidad no lineal.

3.1.2. Cálculo de $\chi_{ijk}^{(2)}(2\omega)$ con inclusiones de vacío en plata, con fracción de llenado = 0.068.

Además de los cálculos anteriores, se realizó un último con los mismos materiales constituyentes (plata y vacío), con una forma geométrica idéntica a las secciones anteriores, con el mismo comportamiento en el rompimiento de la simetría, pero esta vez con una superficie correspondiente al vacío de 6.8% de la superficie total del material, tal como se muestra en la Fig. 3.9. Como se muestra en la Fig. 3.10, a medida que se aumenta el material de inclusión,

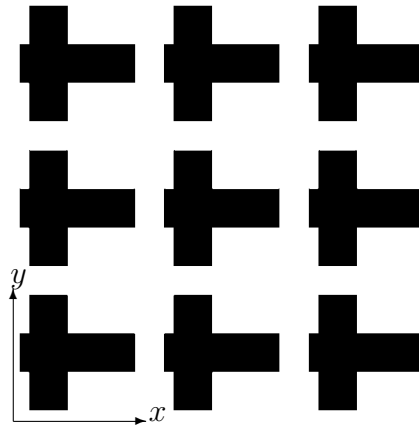


Figura 3.9: Arreglo periódico para las inclusiones de vacío en la plata para formas en cruz con una fracción de llenado = 0.068.

vacío en este caso, la respuesta no lineal, comienza a tener un comportamiento un tanto errático conforme se va rompiendo la simetría. Cabe mencionar, que aparece un máximo en el mismo rango de frecuencias que en los casos anteriores, esta vez siendo muy pequeño en comparación de ellos, pero que al volverse totalmente una figura nueva, aparece un máximo más intenso esta vez recorrido a un rango de frecuencias menor al de los casos anteriores. Este cambio en el comportamiento, se debe también, a que en la medida que se aumenta el tamaño de las inclusiones, llegará el momento en el que estas lleguen a tocarse formando así un arreglo periódico nuevamente centrósimétrico. El hecho de que se vaya recuperando la centrosimetría a medida que se aumenta el tamaño de la inclusión, es el responsable del

3.1. Cálculo de $\chi_{ijk}^{(2)}(2\omega)$ con inclusiones de vacío en plata, con fracción de llenado = 0.035.

cambio en la intensidad de $|\chi_{xxx}^{(2)}(2\omega)|$, al ir pasando de una figura, no centrosimétrica a una totalmente centrosimétrica.

Figura 3.10: Animación para $|\chi_{xxx}^{(2)}(2\omega)|$ como función de la frecuencia del campo incidente. Abrir tesis.pdf con ayuda del Acrobat Reader.

En este caso, la componente con mayor intensidad fue $\chi_{xyy}^{(2)}(2\omega)$, y presenta un comportamiento más uniforme respecto a $\chi_{xxx}^{(2)}(2\omega)$, que es la que se calculó anteriormente. Dicha progresión se muestra en las Figs. 3.11 y 3.12.

3. RESULTADOS.

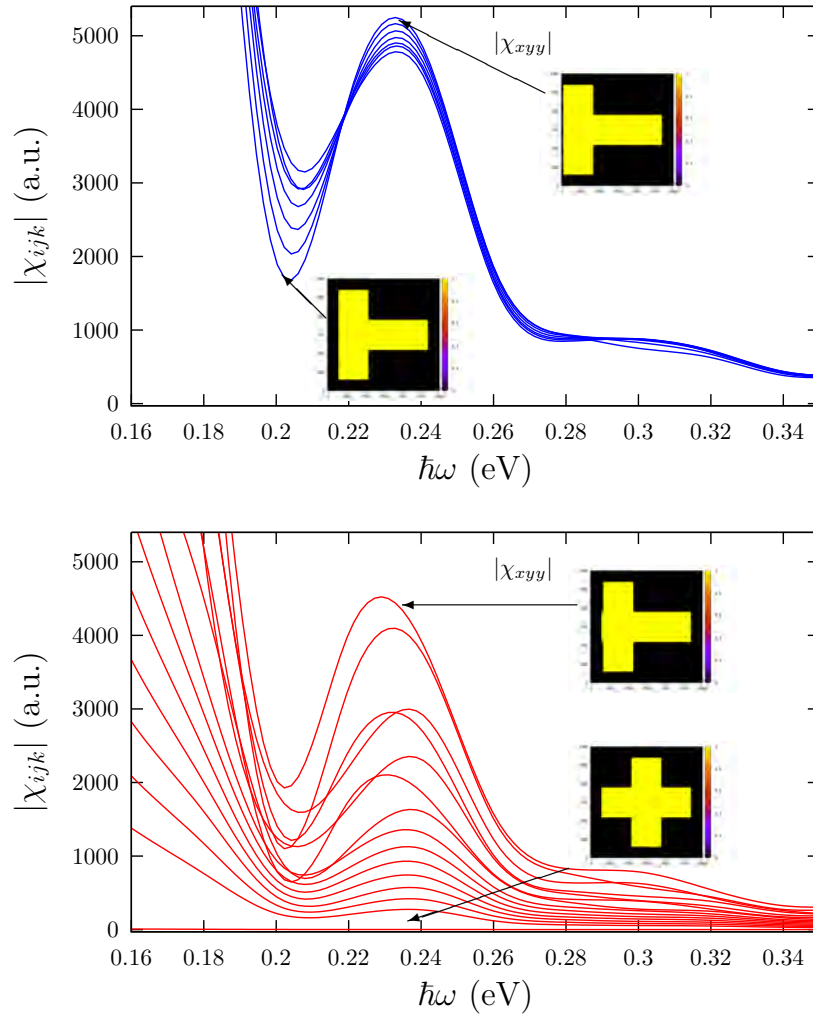


Figura 3.11: Progresión en el comportamiento de $|\chi_{xyy}^{(2)}(2\omega)|$.

Por otra parte, como en los cálculos anteriores, en la Fig. 3.13 se muestra una comparación de las componentes diferentes de cero de la susceptibilidad no lineal, para la celda unitaria mostrada en ella, donde se aprecia claramente la diferencia de intensidades entre $|\chi_{xyy}^{(2)}(2\omega)|$ y $|\chi_{xxx}^{(2)}(2\omega)|$.

3.1. Cálculo de $\chi_{ijk}^{(2)}(2\omega)$ con inclusiones de vacío en plata, con fracción de llenado = 0.035.

Figura 3.12: Animación para $|\chi_{xyy}^{(2)}(2\omega)|$ como función de la frecuencia del campo incidente. Abrir tesis.pdf con ayuda del Acrobat Reader.

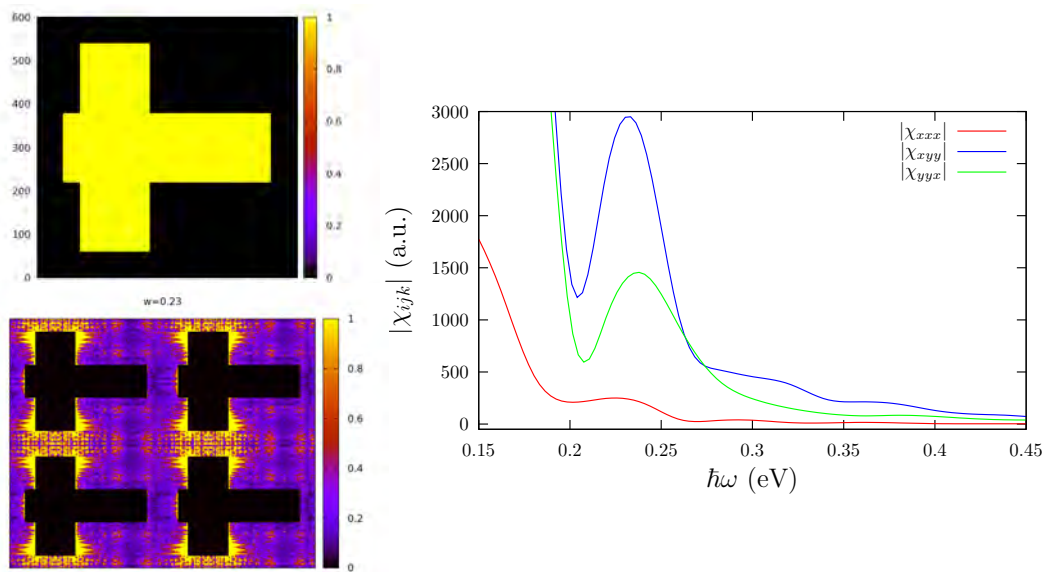


Figura 3.13: Componentes diferentes de cero para la susceptibilidad no lineal.

4 CONCLUSIONES.

Se ha presentado un método efectivo para poder calcular propiedades ópticas no lineales en un metamaterial con nanoestructuras, en específico el método es capaz de calcular la susceptibilidad de segundo orden, $\chi_{ikj}^{(2)}(2\omega)$, así como la polarización no lineal, $\mathbf{P}^{(2)}(\mathbf{r})$. Para el caso de estos metamateriales realizados a partir de plata, cabe mencionar que esta no presenta una estructura en $\chi_{ikj}^{(2)}(2\omega)$, debido a las condiciones en las que esta se encuentra, de manera que con este método, es posible cambiar estas condiciones para que el metamaterial creado sea apto para generar segundo armónico.

Basándonos en los resultados obtenidos, podemos observar la dependencia de $\chi_{ikj}^{(2)}(2\omega)$ en un metamaterial con la geometría de la celda unitaria que lo conforma. En específico, se nota como con el rompimiento de la centrosimetría del sistema esta cantidad se va presentando en el metamaterial. Con ayuda de esto, se pueden generar algunas propiedades interesantes, ya que con materiales que naturalmente tienen una inversión de simetría, podemos generar efectos que antes estaban *prohibidos* en ellos, simplemente con crear una estructura periódica a nuestra conveniencia.

Además, es de gran interés el rango de energía del espectro electromagnético que se analizó y donde se obtuvieron resultados interesantes, ya que desde el punto de vista tecnológico, no existen aún dispositivos generalmente cristales, que presenten las propiedades que hemos encontrado en ese rango de frecuencias.

Es importante aclarar, el hecho de que hasta el momento son predicciones de propiedades, mediante el modelo dipolar, ya que esta es una primera, aproximación con la cuál se realizaron

4. CONCLUSIONES.

los cálculos que en esta tesis se presentaron.

Como trabajo a futuro, se pueden listar algunas cosas:

-Realizar el trabajo experimental que compruebe la exactitud de las predicciones hechas en este trabajo. Con las técnicas de hoy en día, es viable construir dichos sistemas para poder hacer las mediciones de sus propiedades ópticas, y compararlas tanto con el modelo dipolar.

-Al relacionar los pixeles del sistema con los materiales que conforman nuestro metamaterial, existe un pequeño detalle con el pixelado de nuestra celda unitaria, ya que por el momento se pueden realizar los cálculos de manera efectiva, cuando las inclusiones se realizan mediante líneas rectas y que coincidan con la frontera entre pixeles. Esto se debe a que al ser el pixel la unidad más pequeña para el cálculo, no se puede dividir uno de ellos cuando se presenta una línea curva. Es un trabajo importante el solucionar esta parte del cálculo ya sea aumentando el número de pixeles o en su defecto encontrar un método general para dibujar estructuras con cualquier simetría.

- Tener un control detallado sobre la geometría del sistema y de ser posible, poder controlar los parámetros geométricos necesarios para la generación de segundo armónico y de esta manera saber de antemano que parámetros geométricos se deben modificar para tener un control aún más amplio en los cálculos realizados.

Por último, se espera seguir explorando nuevos sistemas, ya sea con distintas geometrías o distintos materiales, haciendo combinaciones de ellos y tratando de predecir cuál es el mejor para el efecto deseado.

BIBLIOGRAFÍA

- [1] E. Ozbay. The magical world of photonic metamaterials. *Optics and Photonics News*, November 2008, 2008.
- [2] N. Engheta. *Metamaterials: Physics and Engineering Explorations*. Wiley and Sons, INC, 2006.
- [3] I.V. Lindell and A.H. Sihvola. Karl f. lindman: The last hertzian, and a harbinger of electromagnetic chirality. *IEEE Antennas and Propagation Magazine*, 34(3), June 1992.
- [4] W.E. Kock. Metallic delay lenses. *Bell Sys. Tech. J.*, 27:58–82, 1948.
- [5] J.B Pendry. Negative refraction makes a perfect lens. *Physical Review Letters*, 85:3966–3969, 2000.
- [6] B. Ung. Metamaterials: a metareview. *École Polytechnique de Montréal*, 2009.
- [7] R. M. Walser. Electromagnetic metamaterials. *Proc. SPIE*, 4467:1–15, 2001.
- [8] J. Valentine and S. Zhang. Three-dimensional optical metamaterial with a negative refractive index. *Nature*, 07247, 2008.
- [9] C. Caloz and T. Itoh. Electromagnetic metamaterials: Transmission line theory and microwave application. *Wiley-Interscience*, 2006.
- [10] V.G. Veselago. The electrodinamics of substances with simultaneously negative values of ϵ and μ . *Soviet Physics Uspekhi*, 10(4), 1968.

- [11] J.B. Pendry and D.R. Smith. Metamaterials and negative refractive index. *Science*, 305, 2004.
- [12] B. Mendoza and L. Mochán. Tailored optical polarization in nanostructured metamaterials. *Physical Review B*, 94(19), 2016.
- [13] W. L. Mochán, G. P. Ortiz, and B. S. Mendoza. Efficient homogenization procedure for the calculation of optical properties of 3d nanostructured composites. *Optics Express*, 21(18), 2010.
- [14] J. D. Jackson. *Classical Electrodynamics, 3rd Edition*. Wiley-VCH, 3rd edition edition, 1998.
- [15] J. A. Armstrong, N. Bloembergen, and Ducuing J. Interactions between light waves in a nonlinear dielectric. *Physical Review*, 127(6):1918–1939, 1962.
- [16] M.C. Downer, Y. Jiang, D. Lim, L. Mantese, P.T. Wilson, B.S. Mendoza, and V.I. Gavrilenko. Optical second harmonic spectroscopy of silicon surfaces, interfaces and nanocrystals. *Physica Status Solidi A*, 188(4):1371–1381, 2001.
- [17] E. Cortes, L. Mochán, and B. Mendoza. Optical properties of nanostructured metamaterials. *physica status solidi (b)*, 247(8), 2010.
- [18] R. Haydock. The recursive solution of the schrodinger equation. *Computer Physics Communications*, 35(20):11–16, 1980.
- [19] W. L. Mochán and R.G. Barrera. Electromagnetic response of systems with spatial fluctuations: I. general formalism. *Physical Review B*, 32(8):4989–5001, 1985.
- [20] E. D. Palik. *Handbook of optical Constants of Solids*. Academic Press, 1998.
- [21] David J. Bergman and Keh-Jim Dunn. Bulk effective dielectric constant of a composite with a periodic microgeometry. *Phys. Rev. B*, 45(23):13262–13271, Jun 1992.

- [22] Kazuaki. Sakoda. *Optical Properties of Photonic Crystals*. Springer Series in Optical Sciences. Springer, 2004.
- [23] B. Mendoza and L. Mochán. Exactly solvable model of surface second-harmonic generation. *Physical Review B*, 53(8), 1996.
- [24] Prof. Markus B. Raschke. url<https://nano-optics.colorado.edu>.