

**CENTRO DE INVESTIGACIÓN CIENTÍFICA Y DE EDUCACIÓN  
SUPERIOR DE ENSENADA, BAJA CALIFORNIA**



---

**PROGRAMA DE POSGRADO EN CIENCIAS  
EN ÓPTICA**

---

**Cambios de fase en la luz esparcida por nanoantenas ópticas**

Tesis

para cubrir parcialmente los requisitos necesarios para obtener el grado de

Maestro en Ciencias

Presenta:

**Juan Uriel Esparza Villa**

Ensenada, Baja California, México

2014

Tesis defendida por

**Juan Uriel Esparza Villa**

y aprobada por el siguiente comité

---

Dr. Eugenio Rafael Méndez Méndez

*Director del Comité*

---

Dr. Pedro Negrete Regagnon

*Miembro del Comité*

---

Dra. Catalina López Bastidas

*Miembro del Comité*

---

Dra. María del Carmen Maya Sánchez

*Miembro del Comité*

---

Dr. Victor Ruíz Cortés

*Miembro del Comité*

---

Dr. Remi Vincent

*Miembro del Comité*

---

Dr. Pedro Negrete Regagnon

*Coordinador del Programa de  
Posgrado en Óptica*

---

Dr. Jesús Favela Vara

*Director de Estudios de Posgrado*

Diciembre, 2014

Resumen de la tesis que presenta Juan Uriel Esparza Villa como requisito parcial para la obtención del grado de Maestro en Ciencias en Óptica.

## Cambios de fase en la luz esparcida por nanoantenas ópticas

Resumen elaborado por:

---

Juan Uriel Esparza Villa

Los componentes ópticos comunes, como las lentes y los prismas, basan su operación en la acumulación gradual de la fase a lo largo del camino óptico. El trabajo que se presenta en esta tesis está motivado por las posibilidades de diseño que abre un nuevo tipo de dispositivo óptico cuyo principio de operación se basa en la introducción de cambios locales de fase en el frente de onda reflejado y/o transmitido. Lo anterior se puede lograr con lo que se han llamado metasuperficies. Los diseños reportados de metasuperficies consisten de arreglos de resonadores nano ópticos para operación a longitudes de onda del infrarrojo (alrededor de  $8\mu\text{m}$ ) cuya respuesta en fase especificada dentro del rango elemental de  $0$  a  $2\pi$ .

Motivados por las posibilidades de esta estrategia para diseñar componentes ópticos novedosos en el visible, en esta tesis se presenta un estudio teórico y numérico de las propiedades ópticas de esparcimiento (principalmente los cambios de fase) de nanopartículas metálicas en la región visible del espectro electromagnético.

Para mejorar nuestra intuición sobre el problema, utilizamos primero técnicas analíticas basadas en la aproximación cuasiestática y estudiamos la respuesta en fase de nanopartículas esféricas y esferoidales. Encontramos que, para polarización lineal incidente, la respuesta en fase de nanoesferas y nanoesferoides está limitada al rango de  $0$  a  $\pi$ .

Con el propósito de ampliar este intervalo, y para superar las limitaciones de la aproximación cuasiestática, en lo que respecta a tamaños y formas de las partículas, realizamos cálculos más realistas utilizando el método de la aproximación de dipolos discretos. Nos concentramos en el caso de cilindros con terminaciones semiesféricas (nanobarras), dando especial atención a la respuesta en fase. Se consideran diferentes tamaños y orientaciones de las nanobarras con el propósito de conseguir el control deseado de la respuesta en fase. Encontramos que en la componente ortogonal de la luz esparcida, la fase puede cubrir el intervalo completo de  $0$  a  $2\pi$  y que esta respuesta se puede sintonizar sobre todo el intervalo visible del espectro.

Con estos resultados se propone un diseño de metasuperficie periódica compuesta por ocho nanobarras en cada célula elemental, que funciona como un prisma para una longitud de onda de  $633\text{nm}$ . El diseño es evaluado empleando un modelo basado en el principio de Huygens-Fresnel.

Palabras Clave: **Esparcimiento de luz, cambios de fase, plasmones de superficie localizados, nanoantenas, metasuperficies.**

Abstract of the thesis presented by Juan Uriel Esparza Villa as a partial requirement to obtain the Master of Science degree in Master in Sciences in Optics.

## Phase shift of the scattered light by optical nanoantennas

Abstract by:

---

Juan Uriel Esparza Villa

Common optical components, such as lenses and prisms, base their operation on the effects of the gradual accumulation of optical phase along the beam path. The work presented in this thesis is motivated by the design possibilities opened up by a new type of optical element whose operation is, instead, based on the introduction of local modification of the phase of the reflected and/or transmitted wavefront. This is achieved with, what has been termed, metasurfaces. The reported designs of metasurfaces consist of arrays of optical nanoresonators that operate at infrared wavelengths (around  $8\mu\text{m}$ ) whose phase response is specified in the elementary range  $0$  to  $2\pi$

Motivated by the possibilities of this approach to design novel optical elements in the visible, in this thesis we present a theoretical and numerical study of the optical scattering properties (mainly phase response) of metallic nanoparticles in the visible spectrum range.

To gain some insight into the problem, we first use analytical techniques based on the quasi static approximation to study the phase response of spherical and spheroidal nanoparticles. We find that with linear incident polarization, the phase response of nanospheres and nanospheroids is limited to the range  $0$  to  $\pi$ .

To broaden this range, and in order to overcome the limitations of the quasi static approximation on the size and shape of the particles, we carry out more realistic calculations on the basis of the discrete dipole approximation. We focus on the case of cylinders with hemispherical end-caps (nanorods), giving special attention to the phase response. Different sizes and orientations of the nanorods are considered in order to achieve the desired control of the phase response. We find that in the cross-polarized component of the scattered light the phase response can cover the whole interval from  $0$  to  $2\pi$ , and that the response can be tuned over the visible spectral range.

With these results we propose a design for a prism-like periodic metasurface that consists of eight nanorods per elementary cell, for operation at a wavelength of  $633\text{nm}$ . The design is evaluated using a model based on the Huygens-Fresnel principle.

**Keywords:** Light scattering, phase shift, localized surface plasmons, nanoantennas, metasurfaces.

## Dedicatoria

*A mis padres y hermana por que en todo momento los llevo conmigo.*

## Agradecimientos

A Dios, por la vida y las enseñanzas.

A mis padres, por su apoyo incondicional y ser mis maestros de perseverancia, dedicación y esfuerzo para alcanzar grandes logros.

Al Dr. Eugenio R. Méndez, por su invaluable apoyo, paciencia y enseñanzas que me han llevado a realizar el trabajo de tesis. Gracias.

A los miembros del comité de tesis, por sus comentarios, sugerencias, recomendaciones durante el desarrollo del presente.

A Remi Vincent, miembro del comité, por su fundamental apoyo desde el principio de este trabajo y las continuas recomendaciones al mismo.

A todos los investigadores, estudiantes, técnicos y personal administrativo del departamento de óptica, por que su paciencia, entusiasmo y sobre todo calidad humana que hacen la estancia en CICESE un lugar magnífico. En especial a los “Eugenianos” y “Tchaikianas” que siempre formaron parte de mi desarrollo integral como estudiante.

A los miembros de los capítulos estudiantiles OSA-SPIE del CICESE, por su convicción, entusiasmo y dedicación para llevar y mostrar la ciencia a todos y en todos los ámbitos sociales.

Al Centro de Investigación Científica y de Educación Superior de Ensenada.

Al Consejo Nacional de Ciencia y Tecnología (CONACyT) por brindarme el apoyo económico para realizar mis estudios de maestría.

# Tabla de contenido

	Página
<b>Resumen en español</b>	<b>iii</b>
<b>Resumen en inglés</b>	<b>iv</b>
<b>Dedicatoria</b>	<b>v</b>
<b>Agradecimientos</b>	<b>vi</b>
<b>Lista de figuras</b>	<b>viii</b>
<b>Lista de tablas</b>	<b>xi</b>
<b>1. Introducción</b>	<b>1</b>
<b>2. Propiedades ópticas de metales</b>	<b>5</b>
2.1. Modelo del gas de electrones libres . . . . .	6
2.2. Modelo de Drude-Lorentz . . . . .	8
2.3. Esparcimiento y absorción de luz por partículas metálicas . . . . .	9
2.3.1. Matriz de amplitud . . . . .	10
2.3.2. Secciones transversales y distribución angular de esparcimiento .	12
2.4. Aproximación cuasiestática . . . . .	14
2.4.1. Polarizabilidad cuasiestática . . . . .	18
2.4.2. Polarizabilidad efectiva . . . . .	22
2.5. Comparación de los modelos de polarizabilidad . . . . .	24
<b>3. Nanoantenas y metasuperficies</b>	<b>28</b>
3.1. Nanoantena dipolo y escalamiento con la longitud de onda . . . . .	29
3.2. Metasuperficies . . . . .	33
3.2.1. Antenas en “V” . . . . .	33
3.2.2. Estructuras GSP . . . . .	37
<b>4. La aproximación de dipolos discretos</b>	<b>41</b>
4.1. La polarizabilidad en la DDA . . . . .	44
4.1.1. Polarizabilidad LDR . . . . .	45
4.2. Aplicabilidad y limitación de la DDA . . . . .	46
<b>5. Respuesta en fase de nanoantenas</b>	<b>53</b>
5.1. Esferas y esferoides . . . . .	53
5.2. Cilindros con terminaciones semiesféricas . . . . .	56
5.2.1. Dependencia con AR . . . . .	57
5.2.2. Dependencia con la rotación . . . . .	58
5.2.3. Polarización cruzada . . . . .	60
5.2.4. Nanoantenas espejo . . . . .	61
5.3. Diseño de una metasuperficie . . . . .	63
5.3.1. Metasuperficies de Huygens-Fresnel . . . . .	64
<b>6. Resumen y conclusiones</b>	<b>69</b>
<b>Lista de referencias</b>	<b>72</b>

## Lista de figuras

Figura		Página
1.	(a)-(b) Parte real e imaginaria de la función dieléctrica del oro, y (c)-(d) la plata. . . . .	10
2.	Plano de esparcimiento (color verde) y descomposición del campo eléctrico incidente (color rojo) y esparcido (color azul). . . . .	11
3.	Esfera en un campo electrostático uniforme. . . . .	15
4.	(a)-(b) Parte real e imaginaria de $\epsilon_{Drude,real}$ , (c)-(d) módulo cuadrado y arco-tangente de $\alpha(\omega)$ . . . . .	19
5.	Esferoide con semiejes $a < b < c$ en un campo electrostático uniforme. . . . .	21
6.	Comparación de las eficiencia de (a) extinción, (b) absorción, (c) esparcimiento y (d) cambio de fase en función del radio utilizando los modelos: — Mie, $\alpha_{eff}$ , $\dots$ $\alpha_{qs}$ . . . . .	25
7.	Gráficas espectrales de eficiencias de (a) extinción, (b) absorción, (c) esparcimiento y (d) cambio de fase para una esfera con $x = 0.11$ utilizando los modelos: — Mie, ---- $\alpha_{eff}$ , $\dots$ $\alpha_{qs}$ . . . . .	26
8.	Gráficas espectrales de eficiencias de (a) extinción, (b) absorción, (c) esparcimiento y (d) cambio de fase para una esfera con $x = 0.57$ utilizando los modelos: — Mie, ---- $\alpha_{eff}$ , $\dots$ $\alpha_{qs}$ . . . . .	27
9.	(a) Antena dipolar de media longitud de onda indicando la circulación de corriente sobre el conductor y la emisión de radiación en campo lejano. (b) Patrón angular de esparcimiento en campo lejano, (c) planos de esparcimiento (SP, por sus siglas en inglés) en direcciones paralela (SP P) y ortogonal (SP O) al eje de la antena . . . . .	28
10.	Representación de una nanoantena con constante dieléctrica $\epsilon(\omega)$ , diámetro $2R$ y longitud característica $L$ . La dirección de incidencia es normal al eje de la nanoantena y la polarización es a lo largo del eje de simetría. . . . .	30
11.	Curvas espectrales de las eficiencias de extinción en nanobarras de radio constante, $R = 5$ nm, y relación de aspecto creciente. Las líneas verticales muestran la estimación de acuerdo al modelo (61). . . . .	31
12.	(a) Parte real e (b) imaginaria de la función dieléctrica utilizada en el método DDA (----) y la considerada por Novotny (2007) (—). . . . .	32
13.	Excitación del modo (a) simétrico y (b) asimétrico de una antenas en “V” con brazos de longitud $h$ que forman un ángulo $\Delta$ entre ellos. . . . .	34
14.	Antenas en “V” con excitación a $45^\circ$ respecto a $\hat{s}$ y $\hat{a}$ . . . . .	35
15.	(a) Amplitud y (b) fase de la luz esparcida para una polarización ortogonal a la del campo incidente en función de $h$ y $\Delta$ a una longitud de onda $\lambda_0 = 8\mu\text{m}$ . Tomada de la referencia Yu <i>et al.</i> (2011). . . . .	35
16.	Antenas espejo de la figura 14. . . . .	36

## Lista de figuras (continuación)

Figura	Página
17. Gradiente de fase compuesto por ocho nanoantenas tipo “V” con amplitud de esparcimiento igual y diferencia de fase $\Delta\Phi = \frac{\pi}{4}$ entre antenas vecinas. Tomada de la referencia Yu <i>et al.</i> (2011). . . . .	36
18. Imagen de un microscopio electrónico de barrido (SEM) de la metasuperficie utilizada para demostrar la Ley generalizada. Se resalta esquemáticamente el diseño de la supercélula. Tomada de la referencia Yu <i>et al.</i> (2011). . . . .	37
19. (a) Dibujo esquemático de un nanotabique de oro de longitud $L_x$ y $L_y$ sobre una placa separadora de vidrio con espesor $t_s$ y un sustrato de oro. (b) coeficientes de reflexión para $\Lambda = 240\text{nm}$ , $t = t_s = 50\text{nm}$ y $\lambda_0 = 800\text{nm}$ . Las líneas muestran contornos de fase constante. Tomada de la referencia Pors y Bozhevolnyi (2013b) . . . . .	38
20. Diseños de supercélulas con nanotabiques. (a) Divisor de polarización, (b) divisor de polarización con TE en dirección especular y (c) reflexión independiente de la polarización. Tomada de la referencia Pors y Bozhevolnyi (2013b) . . . .	40
21. (a)-(e) Eficiencias de absorción y esparcimiento obtenidos con el método DDA ( $N=59728$ dipolos) y con la expansión de Mie. (f) Respuesta en fase calculada con los dos métodos (— Mie, ---- DDA). . . . .	48
22. Errores relativos fraccionales de $Q_{abs}$ y $Q_{esp}$ utilizando $N = 59728$ dipolos (a)-(b), y $N = 470480$ dipolos(c)-(d). . . . .	49
23. Errores relativos fraccionales de fase ( $Er^\phi$ ), eficiencia de absorción ( $Er^{abs}$ ) y esparcimiento ( $Er^{esp}$ ) en función del radio de esferas de oro para tres diferentes arreglos de dipolos: $N = 59728$ , $N = 470480$ y $N = 1579584$ dipolos. . . . .	50
24. Errores relativos fraccionales de fase ( $Er^\phi$ ), eficiencia de absorción ( $Er^{abs}$ ) y esparcimiento ( $Er^{esp}$ ) en función del radio de esferas de plata para tres diferentes arreglos de dipolos: $N = 59728$ , $N = 470480$ y $N = 1579584$ dipolos. . . . .	51
25. (a) Cambios de fase y (b) eficiencia de esparcimiento en función de la longitud de onda para esferas de plata de varios radios. . . . .	54
26. (a) Cambios de fase y (b) eficiencia de esparcimiento espectrales en esferoides prolatos de plata con diferente relación de aspecto ( $AR$ , por sus siglas en inglés). . . . .	55
27. Diagrama de un cilindro con terminaciones semiesféricas de oro con incrementos longitudinales. . . . .	57
28. (a) Cambio de fase y (b) eficiencia de esparcimiento en nanobarras de oro con diferente $AR$ . . . . .	58

## Lista de figuras (continuación)

Figura	Página
29. Ilustración de la rotación de una nanobarra de oro para un ángulo $\Phi$ medido a partir del eje $y$ , iluminada con luz linealmente polarizada a lo largo del eje $y$ . Se calcula la fase tanto para la componente de polarización paralela ( $\Delta\phi_p$ ) como la ortogonal ( $\Delta\phi_s$ ) a la dirección de la polarización lineal incidente $E_y$ .	59
30. (a) Diagrama que ilustra la geometría y los planos en los que se calcula el campo cercano. Intensidad del campo cercano para la excitación del modo (b) longitudinal y (c) transversal. . . . .	60
31. (a) Fase del campo paralelo a la dirección de polarización de incidencia y (b) eficiencia de esparcimiento para diferentes ángulos de rotación de una nanobarras de oro con $AR = 5$ . . . . .	61
32. Fase del campo perpendicular a la dirección de polarización de incidencia para (a) diferentes ángulos de rotación y (b) diferentes relaciones de aspecto. . . .	62
33. Representación gráfica de (a) nanoantena rotada, (b) nanoantena espejo. . .	62
34. Cambios de fase $\Delta\phi_s$ con nanobarras espejo de diferentes tamaños. . . . .	63
35. Cambios de fase del campo ortogonal utilizando nanobarras rotadas con sus correspondientes espejo. Se remarcan las líneas de emisión del azul ( $\lambda_0 \approx 445\text{nm}$ ), verde ( $\lambda_0 \approx 520\text{nm}$ ) y rojo ( $\lambda_0 \approx 633\text{nm}$ ). . . . .	64
36. Diseño de un gradiente de fase lineal (GFL) para operación a una longitud de onda $\lambda_0 \approx 633\text{nm}$ . . . . .	64
37. Frentes de onda planos incidiendo en un arreglo de nanoantenas que actúan como fuentes puntuales secundarias de donde emergen ondas que introducen una fase $\phi_j$ a lo largo del eje $\hat{z}$ . . . . .	65
38. Patrones angulares de esparcimiento de las ocho nanoantenas que conforman el diseño. . . . .	66
39. Patrón angular de esparcimiento de un gradiente de fase lineal (GFL). . . . .	67
40. Patrón angular de esparcimiento de una metasuperficie compuesta por 20 GFL. . . . .	68

## Lista de tablas

Tabla		Página
1.	Densidad de electrones libres, tiempos de relajación y frecuencias de plasma de algunos elementos metálicos. *Valores tomados a $273^{\circ}K$ de acuerdo a Ashcroft y Mermin (1976). . . . .	8
2.	Estimación de resonancia utilizando la expresión (61) y el método DDA en nanobarras con relación de aspecto creciente. . . . .	32

# Capítulo 1. Introducción

---

En los últimos años el empeño por miniaturizar dispositivos ópticos y lograr una mejor compatibilidad con dispositivos de micro y nanoelectrónica ha ocasionado el descubrimiento de fenómenos ópticos que sólo ocurren a escalas por abajo de la longitud de onda. La nanofotónica es la ciencia que estudia la interacción luz-materia y la manipulación de luz a escalas nanométricas. Dentro de la nanofotónica se encuentra la plasmónica, un campo que se concentra en la interacción de ondas electromagnéticas con los electrones de conducción en metales y que es el que se encuadra el presente trabajo de tesis.

Los avances en las técnicas de fabricación de estructuras en escalas nanométricas, como la litografía de haz de electrones y los procesos de transferencia de patrones (litografía nanoimpresa), han permitido desarrollar parte del potencial de la nanofotónica y plasmónica. Esto, aunado a que en las últimas décadas han mejorado mucho las herramientas para la solución numérica de problemas electromagnéticos, tanto comerciales como de acceso libre, ha sido factor clave en los acelerados avances del campo.

La nanofotónica, junto con la plasmónica, emergen como ciencias capaces de generar aplicaciones novedosas. Por ejemplo, en terapias para el tratamiento de cáncer [Hirsch *et al.* (2003)], en las tecnologías de la información y comunicación [Leuthold *et al.* (2013); Wassel *et al.* (2012)] y en cuestiones de energía solar e iluminación [Schuller *et al.* (2010)], entre muchas otras.

La mayoría de los trabajos de plasmónica están basados en la física clásica. Las cuatro ecuaciones de Maxwell más las condiciones de frontera son suficientes para modelar con buena aproximación los efectos plasmónicos observados. Por su fenomenología, éstos pueden clasificarse en dos tipos: plasmones polaritones de superficie (SPP, por sus siglas en inglés) y plasmones de superficie localizados o plasmones localizados de superficie (LSP, por sus siglas en inglés).

Los SPP son excitaciones electromagnéticas que se propagan como ondas superficiales atrapadas en la vecindad de la interfase entre un dieléctrico y un metal. Para su excitación se utilizan diferentes técnicas de acoplamiento, como la configuración de Otto [Otto (1968)],

la configuración de Kretschmann [Kretschmann y Raether (1968)], rejillas de difracción [Ritchie *et al.* (1968); Hutley y Maystre (1976)] o superficies rugosas [West y O'Donnell (1995); Maradudin *et al.* (1995)]. También se han diseñado estructuras superficiales compactas específicamente para este propósito [De la Cruz *et al.* (2012); De la Cruz Arreola (2013)].

Por otra parte, los LSP son oscilaciones de los electrones libres en partículas metálicas que pueden ser resonantes. Las características y posición espectral de estas resonancias dependen fuertemente de la geometría de la partícula y algunas de ellas se manifiestan claramente en su respuesta óptica.

El presente trabajo está centrado en efectos que están relacionados con los plasmones localizados de superficie. Nos interesa principalmente la respuesta en fase y amplitud de la radiación esparcida por nanoestructuras metálicas en la región visible del espectro electromagnético. Es decir, de nanoantenas ópticas.

Mientras que las antenas de radiofrecuencia fueron desarrolladas como una solución a los problemas de comunicación a distancia, el surgimiento de las nanoantenas fue impulsada por la microscopía óptica. Análogamente a como se hace en radiofrecuencia y microondas, se define una nanoantena como un dispositivo cuyo propósito es convertir eficientemente la energía propagante en espacio libre a energía localizada y viceversa [Bharadwaj *et al.* (2009)].

En el contexto de microscopía, una antena óptica (o nanoantena por sus dimensiones nanométricas) reemplaza eficazmente una lente u objetivo convencional, concentrando la radiación externa en dimensiones más pequeñas que el límite de difracción. Sus aplicaciones van desde biosensores [Loo *et al.* (2004)], espectroscopía [Nie y Emory (1997)], y celdas fotovoltaicas [Atwater y Polman (2010)], entre muchas otras.

Aunque las nanoantenas ópticas son similares a las antenas de radiofrecuencia o microondas, debido a las propiedades electromagnéticas de los metales a frecuencias ópticas, éstas presentan diferencias cruciales y serán estudiadas con mayor detalle en el Capítulo 3.

La fase de una onda electromagnética es una característica que especifica, parcialmente, el estado en el que se encuentra en un punto dado a un tiempo dado. Ésta varía cíclicamente en espacio y tiempo con respecto a una referencia inicial. El principio de funcionamiento de

la mayoría de los componentes ópticos convencionales manipulan esta característica, junto con la amplitud y la polarización, para realizar su función. Algunos de ellos, como las lentes y los prismas, por ejemplo, modifican el frente de onda de la luz incidente para enfocarla y desviarla, respectivamente. Es decir, estos dispositivos comunes como las lentes y los prismas, basan su operación en los efectos de fase acumulados durante la propagación.

Las estructuras plasmónicas pueden romper con ese principio de funcionamiento acumulativo debido a que, a pesar de tener dimensiones menores a la longitud de onda, pueden introducir cambios de fase y amplitud significativos en la luz esparcida, abriendo la posibilidad de diseñar dispositivos planos con las mismas funcionalidades que los convencionales.

La relación de fase entre la luz incidente y la luz esparcida por una partícula metálica cambia notablemente a través de una resonancia. Esta propiedad fue utilizada por Yu *et al.* (2011), quienes mostraron que con un arreglo periódico de resonadores sobre una placa dieléctrica es posible modificar la amplitud, la fase y la polarización de la luz reflejada y refractada en forma anómala, derivando una ley generalizada de reflexión y refracción que considera los efectos locales de fase producidos por estos resonadores en la interfase. Debido a la analogía de este arreglo de resonadores con los materiales artificiales de volumen, llamados metamateriales, los autores propusieron el nombre de metasuperficie. La operación de estos dispositivos fue demostrada experimentalmente en el infrarrojo medio ( $\lambda = 8\mu\text{m}$ ) utilizando antenas plasmónicas tipo “V”. En el capítulo 3 se presenta una revisión más detallada de éstas metasuperficies y de otras que han sido propuestas en la literatura, así como una discusión de las leyes generalizadas de refracción y reflexión.

Dado que los efectos de reflexión y refracción anómalos fueron observados en el infrarrojo medio, es deseable extenderlos a la región visible del espectro. Esto introduce dificultades adicionales, no solo por la reducción de tamaño, sino por los cambios en las propiedades del material, pues a estas frecuencias los efectos plasmónicos son predominantes y los diseños publicados por Yu *et al.* (2011) no se desempeñan apropiadamente.

Esta tesis está motivada por la búsqueda de estructuras plasmónicas que permitan extender la ley generalizada de reflexión y refracción al rango de frecuencias de la luz visible, con la intención última de diseñar metasuperficies que operen en estas frecuencias. El trabajo

se enfoca en las propiedades ópticas de esparcimiento (principalmente amplitud y fase) de nanopartículas aisladas. Comenzando por estudiar sus propiedades dentro de la aproximación cuasiestática utilizando geometrías canónicas, como esferas y esferoides para, posteriormente, con ayuda del método de la aproximación de dipolos discretos (DDA, por sus siglas en inglés) [Purcell y Pennypacker (1973)], estudiar partículas de mayor tamaño y otras geometrías.

Para realizar este estudio se utiliza el método DDA en su implementación con el programa DDSCAT [Draine (1988)]. Se escogió esta herramienta por la versatilidad que ofrece con respecto a la geometría y composición de las partículas, además de ser una herramienta de dominio público y disponible en internet.

La tesis está organizada de la siguiente manera. En el capítulo 2 se hace una revisión de las propiedades ópticas de metales nobles y los modelos de la función dieléctrica que fueron utilizados en este trabajo. Posteriormente, se estudia el problema generalizado de esparcimiento y absorción por partículas, seguido por el caso de partículas metálicas en el régimen de la aproximación cuasiestática. Todo lo anterior, en el marco de la teoría electromagnética clásica. En el capítulo 3 se introduce el concepto de nanoantena óptica, estudiando el caso de la nanoantena dipolar en la región visible del espectro. También se presenta una revisión de las metasuperficies y de algunos diseños propuestos en la literatura. Posteriormente, en el capítulo 4 se describe el método DDA como una solución al problema de esparcimiento por una partícula con forma arbitraria. Se muestran las limitaciones del método y se introducen los criterios de validación comparando el caso de partículas esféricas con resultados de la teoría de Mie. En el capítulo 5 se presentan resultados de fase y amplitud del campo esparcido por partículas con geometrías canónicas dentro de la aproximación cuasiestática, seguidos con los del método DDA para geometrías diferentes. En la última parte de este capítulo se propone el diseño de una metasuperficie que opere a una longitud de onda de  $\lambda_0 \approx 633\text{nm}$  que es evaluada empleando un modelo basado en el principio de Huygens-Fresnel. Finalmente, en el capítulo 6 se presenta un resumen con las conclusiones y resultados más sobresalientes del presente trabajo.

## Capítulo 2. Propiedades ópticas de metales

---

Desde el punto de vista de la óptica, un material está caracterizado por su respuesta a la excitación de un campo electromagnético a frecuencias de la luz visible. Comúnmente, al menos en óptica lineal, se utilizan dos cantidades para describir estas propiedades: la permeabilidad magnética,  $\mu$ , que indica la capacidad que tiene el material para ser magnetizado, y la permitividad eléctrica (o función dieléctrica)  $\epsilon$ , como una medida de la facilidad con que el material transmite un campo eléctrico. Ambas cantidades determinan el índice de refracción del material de acuerdo a  $n = \sqrt{\mu\epsilon}$ .

A frecuencias ópticas la mayoría de los materiales tienen una permeabilidad magnética  $\mu = 1$ . En metales, la permitividad eléctrica tiene una dependencia con la frecuencia de la luz incidente y además es compleja,  $\epsilon(\omega) = \epsilon_1 + i\epsilon_2$ , ocasionando que el índice de refracción también sea complejo  $n(\omega) = \eta + i\kappa$ .

El uso de cualquier parámetro,  $\epsilon(\omega)$  o  $n(\omega)$ , depende de las características del material que se deseen estudiar. Comúnmente el índice de refracción complejo se utiliza para indicar la velocidad de fase de la radiación electromagnética al propagarse en un medio  $v = \frac{c}{n}$ , o para describir su comportamiento entre la interfaz de dos medios diferentes (Ley de Snell), ambos casos considerando materiales homogéneos de dimensiones mucho mayores a la longitud de onda de la luz.

Por otro lado, si consideramos mecanismos microscópicos, como la absorción y esparcimiento de partículas pequeñas o comparables a la longitud de onda, es mejor utilizar la función dieléctrica compleja  $\epsilon(\omega)$  por su conexión directa con la susceptibilidad eléctrica  $\chi_e(\omega)$  a través de la relación

$$\chi_e(\omega) = 1 - \epsilon(\omega). \quad (1)$$

La susceptibilidad es un parámetro macroscópico que relaciona la polarización del material y el campo eléctrico,

$$\vec{P}(\omega) = \epsilon_0 \chi_e(\omega) \vec{E}(\omega). \quad (2)$$

## 2.1. Modelo del gas de electrones libres

Los materiales conductores se caracterizan por tener electrones libres que se desplazan en su interior. Al incidir un campo electromagnético externo los electrones experimentan fuerzas y el material responde con características propias que dependen de la frecuencia de la radiación incidente. El primer modelo realista de esta respuesta lo propuso el físico alemán Paul Karl Ludwig Drude a principios del siglo pasado (1900). En su tratado, consideró que las propiedades ópticas del metal se pueden describir por un modelo de plasma en donde los electrones se mueven libremente en contra de un fondo fijo de iones positivos.

Partiendo con la ecuación que describe el movimiento de un electrón libre al ser excitado por un campo eléctrico oscilante externo de la forma  $\vec{E}(\omega) = \vec{E}_0 e^{-i\omega t}$ , y tomando un cuenta que su movimiento es frenado por una fuerza de amortiguamiento  $m_e \gamma \dot{\vec{x}}$ , donde  $\gamma$  es la frecuencia característica de colisión. La ecuación quedaría como

$$m_e \ddot{\vec{x}} + m_e \gamma \dot{\vec{x}} = -e \vec{E}_0 e^{-i\omega t}, \quad (3)$$

donde  $e$  y  $m_e$  son la carga y la masa del electrón, respectivamente.

Si proponemos una solución a la ecuación (3) de la forma  $\vec{x}(\omega) = \vec{x}_0 e^{-i\omega t}$ , encontramos que

$$\vec{x}_0(\omega) = \frac{e^2/m_e}{\omega^2 + i\gamma\omega} \vec{E}_0(\omega). \quad (4)$$

Notamos en esta ecuación que el factor proporcional entre  $\vec{x}_0(\omega)$  y  $\vec{E}_0(\omega)$  es complejo. Esto significa que, en general, el electrón no oscila en fase con al campo aplicado, pues su movimiento es amortiguado por colisiones que ocurren a una frecuencia  $\gamma = 1/\tau$ , donde  $\tau$  es el tiempo de relajación o el tiempo promedio entre colisiones.

El momento dipolar inducido por el movimiento del electrón es  $\vec{p}(\omega) = e\vec{x}_0(\omega)$ , así

$$\vec{p}(\omega) = \frac{e^2/m_e}{\omega^2 + i\gamma\omega} \vec{E}_0(\omega). \quad (5)$$

Conociendo la respuesta de un electrón, la constante óptica de una colección de electrones

se pueden obtener a partir de la polarización macroscópica:  $\vec{P}(\omega) = -n^- \vec{p}(\omega)$ , donde  $n^-$  es el número de electrones por unidad de volumen

$$\vec{P}(\omega) = -\frac{n^- e^2 / m_e}{\omega^2 + i\gamma\omega} \vec{E}_0(\omega). \quad (6)$$

La expresión anterior es un ejemplo particular de la relación constitutiva (2). Por lo tanto la susceptibilidad eléctrica del material es de la forma

$$\chi_e(\omega) = -\frac{\omega_p^2}{\omega^2 + i\gamma\omega}, \quad (7)$$

donde  $\omega_p^2 = \frac{n^- e^2}{\epsilon_0 m_e}$  se conoce como la frecuencia de plasma. Finalmente, sustituyendo la expresión (7) en (1) obtenemos la función dieléctrica de Drude,

$$\epsilon_{Drude}(\omega) = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + i\gamma\omega}. \quad (8)$$

Si  $\gamma \ll \omega$ , vemos que cuando  $\omega = \omega_p$  la función dieléctrica se anula. Se dice que en esta situación el plasma se vuelve rígido. Es decir, que la carga se traslada de manera rígida en el material. La frecuencia  $\omega_p$  representa una frecuencia de oscilación natural del sistema.

El mecanismo físico de esta excitación a  $\omega_p$  se puede interpretar retomando el modelo clásico de un metal como un gas de electrones libres moviéndose en contra de un fondo de iones positivos fijos cuya densidad de cargas  $n^+$  es constante en espacio y tiempo. En equilibrio, la densidad de electrones también es  $n^-$ , pero si los electrones son perturbados ligeramente del equilibrio la no uniformidad en la distribución de cargas creará un campo eléctrico que tenderá a restaurar la neutralidad de cargas. Los electrones pasarán de largo a la posición de equilibrio y de esa manera, se establece una oscilación longitudinal de las cargas.

Normalmente la frecuencia de plasma es del orden de  $10^{16} [rad/s]$  (ultravioleta) y el tiempo de relajación de  $10^{-14} [s]$ . Es decir que  $\omega_p$  es mayor que  $1/\tau$  por dos ordenes de magnitud. Por lo anterior, es común despreciar pérdidas por absorción en el material principalmente a frecuencias cercanas o mayores a  $\omega_p$ . En la tabla 1, se presentan valores para los parámetros

que definen la respuesta del material de algunos metales.

**Tabla 1: Densidad de electrones libres, tiempos de relajación y frecuencias de plasma de algunos elementos metálicos. \*Valores tomados a 273°K de acuerdo a Ashcroft y Mermin (1976).**

Elemento	$n^- = \frac{10^{22}}{cm^3}$	$\tau^* 10^{-14}$ [s]	$\omega_p 10^{16}$ [ $\frac{rad}{s}$ ]	$\lambda_p$ [nm]	$E_p = \hbar\omega_p$ [eV]
Li	4.70	0.88	1.22	154	8.04
Na	2.65	3.2	0.91	205	6.04
K	1.4	4.1	0.66	282	4.39
Rb	1.15	2.8	0.60	311	3.97
Cs	0.91	2.1	0.53	350	3.53
Cu	8.47	2.7	1.64	114	10.79
Ag	5.86	4.0	1.36	138	8.98
Au	5.90	3.0	1.37	137	9.01

El tratamiento realizado por Drude se conoce como el modelo del gas de electrones libres y describe muy bien la respuesta óptica de metales a frecuencias por debajo de la frecuencia de plasma  $\omega < \omega_p$ , donde se presenta el comportamiento característico de los metales. A frecuencias mayores, como en el visible y ultravioleta, el modelo pierde precisión, pues se presentan las llamadas transiciones intrabanda del material. Estas transiciones ocasionan que la parte imaginaria de la función dieléctrica incremente mucho más rápido que las estimadas por Drude.

## 2.2. Modelo de Drude-Lorentz

Las transiciones intrabanda se pueden representar con el modelo clásico de un oscilador ligado al núcleo por un resorte (modelo de Lorentz de electrones ligados). Si tomamos un término  $K\vec{x}$  que representa la fuerza de restauración del resorte y lo agregamos a la ecuación de movimiento de un electrón (3), podemos llegar a

$$\epsilon_{Lorentz}(\omega) = 1 + \frac{\omega_p^2}{(\omega_0^2 - \omega^2) - i\gamma\omega}, \quad (9)$$

donde  $\omega_0 = K/m_e$  es la frecuencia natural de oscilación del resorte. El mecanismo físico de esta fuerza de restauración del resorte se puede interpretar como la fuerza responsable de mantener unido el electrón con su núcleo de iones positivos.

En metales nobles como el oro y la plata, cuando  $\omega > \omega_p$ , el modelo de Lorentz con varios osciladores, es suficiente para tomar en cuenta los efectos de las transiciones intrabanda. Sin embargo, cuando  $\omega \gg \omega_p$  el modelo de Drude  $\epsilon_{Drude}(\omega) \rightarrow 1$ , por lo que es necesario extenderlo en esta región. Los efectos integrados de todas estas transiciones en todos los niveles de energía se pueden considerar al agregar una constante a la función dieléctrica  $\epsilon_\infty$  (usualmente  $1 \leq \epsilon_\infty \leq 10$ ), de manera que podemos escribir que

$$\epsilon_{Drude,real}(\omega) = \epsilon_\infty - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + i\gamma\omega}. \quad (10)$$

Uno de los conjuntos de mediciones experimentales de la función dieléctrica de metales nobles mas utilizada en el campo de la plasmónica es el reportado por Johnson y Christy (1972). Si se desea tener una aproximación analítica a estos valores experimentales es posible utilizar ajustes basados en el modelo de Drude-Lorentz con varios osciladores [Rakić *et al.* (1998)].

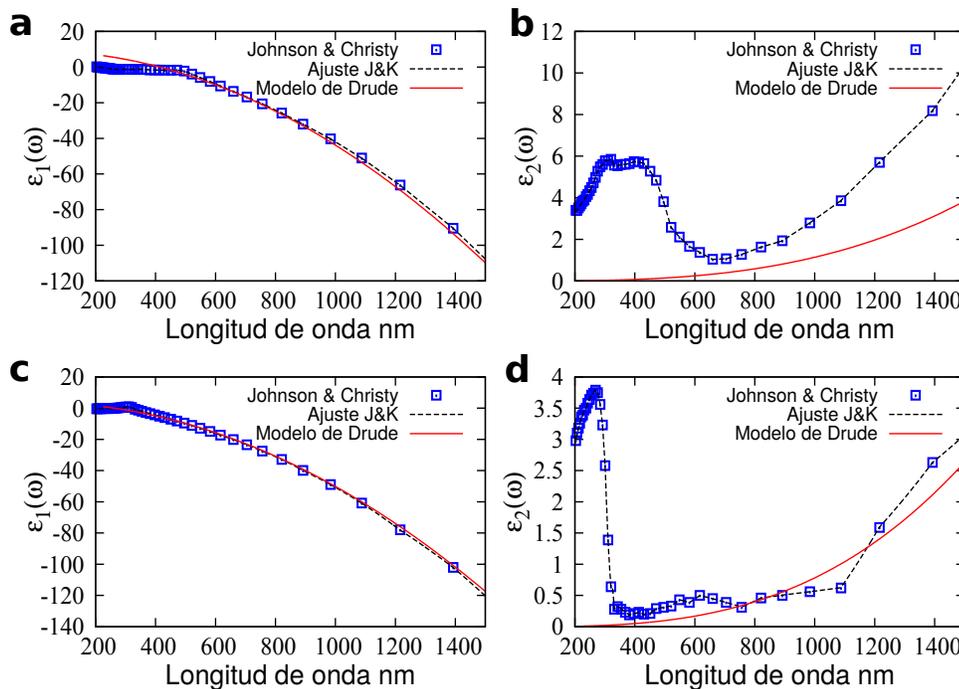
En la figura 1 se muestran gráficas de las propiedades ópticas del oro y la plata utilizando los valores experimentales obtenidos por Johnson y Christy (1972) (recuadros azules), una interpolación lineal a esos valores (línea punteada negra) y el modelo del gas de electrones libres [ecuación (10)] (línea continua roja).

En el gas de electrones libres se utilizaron los siguientes parámetros. Para el oro,  $\hbar\omega_p = 9.02eV$ ,  $\hbar\gamma = 0.026eV$  y  $\epsilon_\infty = 9.06$ . Y para la plata,  $\hbar\omega_p = 9.1eV$ ,  $\hbar\gamma = 0.018eV$  y  $\epsilon_\infty = 3.7$ .

### 2.3. Esparcimiento y absorción de luz por partículas metálicas

Las cargas oscilantes al ser excitadas por una fuente externa radian ondas electromagnéticas. Si la frecuencia de estas ondas secundarias es igual a la de la fuente se dicen que son ondas esparcidas elásticamente. La superposición de todas estas ondas secundarias con el campo incidente es lo que observamos en los fenómenos cotidianos como la reflexión y la refracción.

Desde un punto de vista óptico, una partícula se puede caracterizar por el efecto que provoca en una onda incidente. Las propiedades ópticas más importantes de una partícula



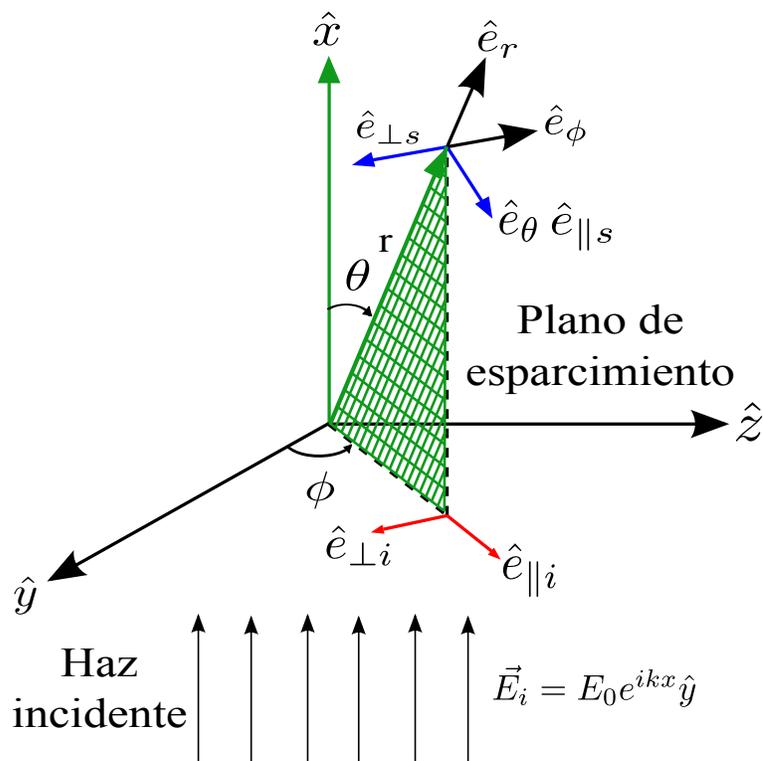
**Figura 1:** (a)-(b) Parte real e imaginaria de la función dieléctrica del oro, y (c)-(d) la plata.

son sus secciones transversales de esparcimiento y absorción, así como su función de fase, que describe el comportamiento angular de la luz esparcida. Estas propiedades dependen de la longitud de onda, de la polarización y de la orientación de la partícula. Antes de conocer el significado y procedencia de estas cantidades, es conveniente formular el problema de esparcimiento para una partícula con geometría arbitraria.

### 2.3.1. Matriz de amplitud

Consideramos una partícula de forma arbitraria que es iluminada con una onda armónica plana  $\vec{E}_i = \vec{E}_0 e^{ikx} \hat{y}$  que se propaga a lo largo del eje  $\hat{x}$  con polarización en  $\hat{y}$  (ver figura 2). En cualquier punto fuera de la partícula se puede definir un plano de esparcimiento formado por la dirección de incidencia,  $\hat{x}$ , y la dirección de la onda esparcida,  $\hat{e}_r$  (figura 2 color verde). El campo eléctrico incidente tiene, en general, una componente paralela  $E_{\parallel i}$  y una perpendicular  $E_{\perp i}$  al plano de esparcimiento (figura 2 color rojo).

A una distancia lo suficientemente lejos del origen ( $kr \gg 1$ ), en la región de Fraunhofer, el campo eléctrico esparcido es transversal a la dirección radial y, de igual forma, se puede descomponer en una componente paralela  $E_{\parallel s}$  y otra perpendicular  $E_{\perp s}$  al plano de esparci-



**Figura 2:** Plano de esparcimiento (color verde) y descomposición del campo eléctrico incidente (color rojo) y esparcido (color azul).

miento (figura 2 de color azul). Las componentes del campo incidente y las del esparcido por la partícula, están relacionadas por una matriz de amplitud (o matriz de Jones) cuyos valores complejos  $S_j$  dependen del ángulo de esparcimiento  $\theta$  y del ángulo azimutal  $\phi$ . Es decir que

$$\begin{pmatrix} E_{\parallel s} \\ E_{\perp s} \end{pmatrix} = \frac{e^{ik(r-x)}}{-ikr} \begin{pmatrix} S_2 & S_3 \\ S_4 & S_1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_{\parallel i} \\ E_{\perp i} \end{pmatrix} \quad (11)$$

donde los índices  $i$  y  $s$  denotan cantidades que corresponden a la incidencias o al esparcimiento, respectivamente. Si una partícula es iluminada con polarización lineal paralela al plano de esparcimiento (componente  $E_{\perp i} = 0$ ), para conocer el campo esparcido solo es necesario conocer los coeficientes  $S_2$  y  $S_4$  que determinan a los campos esparcidos  $E_{\parallel s} \sim S_2$  paralelo y  $E_{\perp s} \sim S_4$  perpendicular (polarización cruzada). Lo anterior significa que, una partícula puede transformar completamente el estado de polarización de la luz incidente y además puede esparcirla en cualquier dirección.

La matriz de amplitud describe el campo esparcido en cualquier posición de la partícula.

Por la simetría en ciertos sistemas, como esferas y cilindros infinitos, los coeficientes  $S_3$  y  $S_4$  que representan la polarización cruzada son nulos.

Normalmente, cuando tratamos con la intensidad en vez del campo se utilizan los parámetros de Stokes, cuyos valores se pueden determinar a partir de la matriz de amplitud y se puede representar por una matriz de dimensiones  $4 \times 4$  llamada matriz de esparcimiento o matriz de Mueller [Bohren y Huffman (1983)].

### 2.3.2. Secciones transversales y distribución angular de esparcimiento

En esta sección buscamos relacionar la matriz de amplitud de una partícula con cantidades observables como la irradiancia (potencia por unidad de área) o módulo cuadrado de la amplitud. Consideramos que la partícula es iluminada por un haz con irradiancia  $I_i$  y que la razón a la que la energía es absorbida por la partícula es  $W_{abs}$ . La constante de proporcionalidad entre estas dos cantidades resulta en una cantidad con dimensiones de área, llamada secciones transversal de absorción [Bohren y Huffman (1983)]

$$W_{abs} = C_{abs}I_i. \quad (12)$$

Similarmente, la partícula además de absorber esparce radiación electromagnética. La razón a la que la energía es esparcida está dada por

$$W_{esp} = C_{esp}I_i, \quad (13)$$

donde  $C_{esp}$  es la sección transversal de esparcimiento. Dentro del campo de la óptica lineal las potencias absorbidas y esparcidas son proporcionales a la potencia incidente y las secciones transversales son el factor de proporcionalidad que las relaciona. La suma de  $C_{abs}$  y  $C_{esp}$  resulta en la sección transversal de extinción.

$$C_{ext} = C_{abs} + C_{esp}. \quad (14)$$

En términos de potencia  $W_{ext} = W_{abs} + W_{esp}$ , *i.e.*, la potencia de extinción es la transformación de energía en cualquiera de sus formas, tanto de radiación como de absorción.

La sección transversal de extinción depende de la composición química de la partícula, su tamaño, forma, orientación, el medio que la envuelve, el estado de polarización y frecuencia de la luz incidente.

Normalizando las secciones transversales por el área geométrica de la partícula ( $G$ ) proyectada a lo largo de la dirección de incidencia, obtenemos las llamadas eficiencias de extinción, absorción y esparcimiento, expresadas como

$$Q_{ext} = \frac{C_{ext}}{G}, \quad Q_{abs} = \frac{C_{abs}}{G} \quad y \quad Q_{esp} = \frac{C_{esp}}{G}, \quad (15)$$

respectivamente. Las eficiencias pierden relevancia cuando se tratan sistemas de conglomerados de partículas, ya que su sección transversal geométrica no está bien definida.

Volviendo a la matriz de amplitud, expresión (11), a una distancia lo suficientemente grande de la partícula, la amplitud del campo esparcido decae con la distancia y es transversal. Podemos entonces escribir

$$\vec{E}_s \sim \frac{e^{ik(r-x)}}{-ikr} \vec{X} E_i, \quad (16)$$

donde  $k = 2\pi/\lambda$ , es el número de onda de la perturbación incidente,  $\vec{E}_i = E_0 e^{ikx} \hat{y}$  que suponemos que es una onda plana que se propaga en la dirección del eje  $\hat{x}$  y está polarizada en  $\hat{y}$ . El vector de amplitud  $\vec{X}$  se relaciona con los elementos escalares de la matriz de amplitud (11) de la forma

$$\vec{X} = (S_2 \cos \phi + S_3 \sin \phi) \hat{e}_{\parallel s} + (S_4 \cos \phi + S_1 \sin \phi) \hat{e}_{\perp s}. \quad (17)$$

La sección transversal de extinción se relaciona con el vector de amplitud de la forma

$$C_{ext} = \frac{4\pi}{k^2} \Re \left\{ \left( \vec{X} \cdot \hat{e}_y \right)_{\theta=0^\circ} \right\}. \quad (18)$$

La expresión anterior es lo que se conoce como el teorema óptico, el cual establece que la onda plana de extinción depende únicamente de la interferencia entre la onda incidente y la onda esparcida hacia adelante ( $\theta = 0^\circ$ ).

El esparcimiento de luz por una partícula no es la misma en todas direcciones, la depen-

dencia angular del campo esparcido se puede caracterizar por

$$\frac{dC_{esp}}{d\Omega} = \frac{|\vec{X}|^2}{k^2}. \quad (19)$$

La potencia esparcida en un ángulo sólido  $\Delta\Omega$ , está entonces dada por

$$P_{\Delta\Omega} = I_i \frac{dC_{esp}}{d\Omega} \Delta\Omega, \quad (20)$$

donde  $I_i$  es la irradiancia incidente sobre la partícula. La expresión (19) es entonces proporcional a la distribución angular de la intensidad de la luz esparcida.

La sección transversal de esparcimiento se puede obtener integrando la intensidad esparcida sobre todas las direcciones. Tenemos entonces que

$$C_{esp} = \int_{4\pi} \frac{|\vec{X}|^2}{k^2} d\Omega. \quad (21)$$

## 2.4. Aproximación cuasiestática

En el estudio de la interacción de ondas electromagnéticas con partículas, además de las propiedades ópticas del material, la forma y la simetría juegan un papel importante. En esta sección analizaremos la solución de una partícula esférica en la aproximación cuasiestática (o electrostática). Para esto, suponemos que  $x \ll 1$ , donde  $x$  es el parámetro de tamaño,  $x = ka$  y  $a$  es el radio de la esfera. En esta aproximación la fase de la oscilación armónica es prácticamente constante sobre todo el volumen de la partícula. Es decir, que todos los puntos de la partícula responden simultáneamente a la excitación incidente y los efectos de retardo son despreciados.

Consideramos un campo electrostático uniforme con líneas de campo paralelas al eje  $\hat{e}_y$  ( $\vec{E}_0 = E_0 \hat{e}_y$ ). La permitividad de la esfera está representada por  $\epsilon_e(\omega)$  y la del medio envolvente (isotrópico no absorbente) como  $\epsilon_m$  (ver figura 3).

Partiendo con la ecuación diferencial de Helmholtz para un campo escalar  $\Phi(r, \theta)$  en

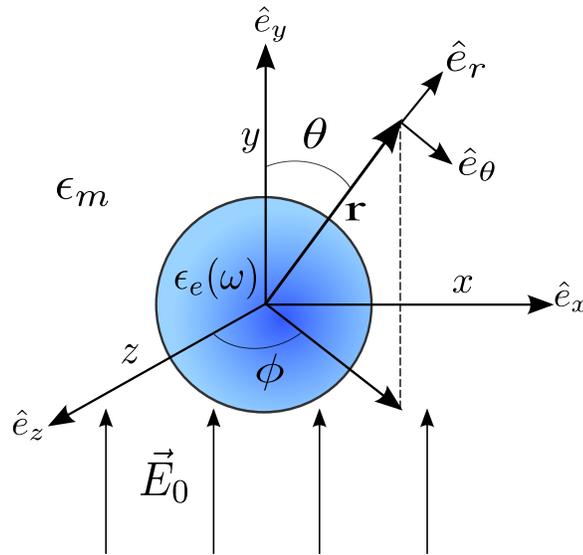


Figura 3: Esfera en un campo electrostático uniforme.

coordenadas esféricas, tenemos que

$$\left( \nabla^2 - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \right) \Phi(r, \theta) = 0. \quad (22)$$

En la aproximación cuasiestática la ecuación de Helmholtz se reduce a la ecuación de Laplace del potencial dentro y fuera de la esfera

$$\nabla^2 \Phi_{in}(r, \theta) = 0 \quad (r < a), \quad \nabla^2 \Phi_{out}(r, \theta) = 0 \quad (r > a), \quad (23)$$

en donde a partir de ellos es posible calcular sus correspondientes campos eléctricos,

$$\vec{E}_{in} = -\nabla \Phi_{in}(r, \theta), \quad \vec{E}_{out} = -\nabla \Phi_{out}(r, \theta). \quad (24)$$

Debido a la simetría del problema, el potencial es independiente del ángulo azimutal  $\phi$ . La solución para el potencial dentro  $\Phi_{in}(r, \theta)$  y fuera  $\Phi_{out}(r, \theta)$  de la esfera se puede escribir como [Maier (2007)]

$$\Phi_{in}(r, \theta) = \sum_{l=0}^{\infty} A_l r^l P_l(\cos \theta), \quad (25)$$

$$\Phi_{out}(r, \theta) = \sum_{l=0}^{\infty} [B_l r^l + C_l r^{-(l+1)}] P_l(\cos \theta), \quad (26)$$

donde  $P_l(\cos\theta)$  son los Polinomios de Legendre de orden  $l$ . Los coeficientes  $A_l$ ,  $B_l$  y  $C_l$  se pueden determinar a partir de las siguientes condiciones de frontera

$$\lim_{r \rightarrow \infty} \Phi_{out} = -E_0 r \cos\theta = -E_0 y, \quad (27)$$

$$\frac{1}{a} \frac{\partial \Phi_{in}}{\partial \theta} = \frac{1}{a} \frac{\partial \Phi_{out}}{\partial \theta} \Big|_{r=a}, \quad (28)$$

$$\epsilon_e \frac{\partial \Phi_{in}}{\partial r} = \epsilon_m \frac{\partial \Phi_{out}}{\partial r} \Big|_{r=a}. \quad (29)$$

La condición (27) indica que a una distancia lo suficientemente lejos de la esfera el potencial debe corresponder al campo aplicado sin perturbación, mientras que las condiciones (28) y (29) representan la continuidad del potencial a través de la interfase  $r = a$ , es decir, la conservación de las componentes tangenciales y normales del campo eléctrico en la superficie de la esfera, respectivamente.

La aplicación de (27) cuando  $l = 1$  obliga que  $B_1 = -E_0$ , los demás coeficientes  $A_l$  y  $C_l$  se pueden obtener de las condiciones en  $r = a$ . Cuando  $l \neq 1$  todas las condiciones de frontera llevan a  $A_l = B_l = C_l = 0$ . Así, la solución del potencial dentro y fuera de la esfera es

$$\Phi_{in}(r, \theta) = -\frac{3\epsilon_m}{\epsilon_e + 2\epsilon_m} E_0 r \cos\theta, \quad (30)$$

$$\Phi_{out}(r, \theta) = -E_0 r \cos\theta + \frac{\epsilon_e - \epsilon_m}{\epsilon_e + 2\epsilon_m} \frac{a^3}{r^2} E_0 \cos\theta. \quad (31)$$

Podemos expresar el potencial dentro de la esfera  $\Phi_{in}(r, \theta)$  retomando el sistema de coordenadas cartesianas (ver figura 3) y, a partir de  $\vec{E}_{in}(y) = -\nabla \Phi_{in}(y)$ , conocer el campo eléctrico. Tenemos entonces que

$$\vec{E}_{in}(y) = \frac{3\epsilon_m}{\epsilon_e + 2\epsilon_m} E_0 \hat{e}_y. \quad (32)$$

Es de particular interés observar como el campo eléctrico en el interior de la esfera es homogéneo en esta aproximación, algo distinto a lo que sucede en otras situaciones.

Por otro lado, el potencial fuera de la partícula [expresión (31)] se puede separar en dos contribuciones  $\Phi_{out}(r, \theta) = \Phi_0 + \Phi_{esp}$ , la primera que corresponde al potencial aplicado y

la segunda que representa el potencial esparcido por la partícula. Podemos expresar a este segundo como

$$\Phi_{esp}(r, \theta) = \frac{1}{4\pi} \frac{\alpha(\omega) E_0 \cos \theta}{r^2}, \quad (33)$$

con  $\alpha(\omega)$  la polarizabilidad cuasiestática

$$\alpha(\omega) = 4\pi a^3 \frac{\epsilon_e - \epsilon_m}{\epsilon_e + 2\epsilon_m}. \quad (34)$$

La expresión (33) tiene un factor de decaimiento que va como  $\Phi_{esp} \sim \frac{1}{r^2}$ . De la literatura sabemos que, en un medio uniforme con permitividad  $\epsilon_m$ , el potencial de un dipolo ideal es de la forma [Stone (1963)]

$$\Phi_{Dipolo}(r, \theta) = \frac{1}{4\pi\epsilon_m} \frac{p \cos \theta}{r^2}. \quad (35)$$

Entonces, podemos escribir a  $\Phi_{esp}$  como

$$\Phi_{esp}(r, \theta) = \frac{1}{4\pi\epsilon_m} \frac{p_0 \cos \theta}{r^2}, \quad (36)$$

con  $p_0$  el momento dipolar  $p_0 = \epsilon_m \alpha(\omega) E_0$ . Notamos entonces que, el campo fuera de la esfera  $\Phi_{out}(r, \theta)$  es la superposición del campo eléctrico aplicado y el campo de un dipolo ideal centrado en el origen.

Hasta ahora hemos visto que al aplicar un campo electrostático uniforme  $\vec{E}_0 = E_0 \hat{e}_y$  a una partícula esférica, es equivalente si reemplazamos la partícula por un dipolo ideal con momento dipolar  $p_0$ . Bajo esta situación electrostática, podemos conocer el campo eléctrico esparcido a partir de  $\vec{E}_{esp}(r, \theta) = -\nabla \Phi_{esp}(r, \theta)$ , entonces las componentes del campo eléctrico son

$$E_r = \frac{2p_0 \cos \theta}{4\pi\epsilon_m r^3}, \quad E_\theta = \frac{p_0 \sin \theta}{4\pi\epsilon_m r^3}. \quad (37)$$

Sin embargo, nos interesa conocer el campo esparcido por la partícula cuando el campo incidente es una onda plana, con oscilaciones en espacio y tiempo de la forma  $\vec{E}_0 = E_0 e^{i(kx - \omega t)} \hat{e}_y$ , donde  $k = \frac{\omega}{c}$  es el número de onda. Por conveniencia, consideraremos a la partícula como un dipolo ideal centrado en  $x = 0$  con momento dipolar  $p_0 = \epsilon_m \alpha(\omega) E_0 e^{-i\omega t}$ . Bajo estas circunstancias, el campo eléctrico radiado por el dipolo es mucho más complicado, pues las oscilaciones espacio-temporales generan un campo magnético. En general, el estudio de la

radiación por un dipolo se divide en regiones (o zonas) que dependen del factor  $kr$ , donde  $r$  es la distancia radial al dipolo. A estas zonas se les conoce como zona estática ( $kr \ll 1$ ), zona intermedia y zona de ondas ( $kr \gg 1$ ). Para fines de interés en esta tesis, nos concentraremos en la región de ondas, donde la distancia a la nanopartícula es muy grande y el campo eléctrico esparcido es transversal a  $\hat{e}_r$ . En esta zona, la componente tangencial  $E_\theta$  es la única significativa y podemos expresarla como el campo eléctrico esparcido por el dipolo de la forma [Stone (1963)]

$$\vec{E}_{esp} = k^2 p_0 \sin \theta \frac{e^{i(kr - \omega t)}}{r} \hat{e}_\theta, \quad (kr \gg 1). \quad (38)$$

La expresión anterior la podemos escribir como

$$\vec{E}_{esp} = S(\theta) \frac{e^{i(kr - \omega t)}}{kr} \hat{e}_\theta, \quad (39)$$

y definir a  $S(\theta)$

$$S(\theta) = k^3 \epsilon_m \alpha(\omega) E_0 \sin \theta, \quad (40)$$

Notamos en la expresión (40) que la polarizabilidad  $\alpha(\omega)$  es compleja, entonces se puede escribir como  $\alpha(\omega) = |\alpha(\omega)| e^{i\phi(\omega)}$ . De esta manera, si evaluamos  $\vec{E}_{esp}$  sobre una superficie esférica de fase constante ( $kr = \text{cte.}$ ), vemos que la fase de  $S(\theta)$  viene de la polarizabilidad  $\alpha(\omega)$ . Es decir, es  $\phi(\omega)$ .

Así, nombraremos como  $\Delta\phi(\omega)$  a la diferencia entre la fase de la onda esparcida por una partícula y la fase que habría adquirido la onda si se propagara en vacío. Si  $\Delta\phi(\omega) > 1$ , diremos que la onda se encuentra retrasada con respecto a su tiempo de llegada en el vacío.

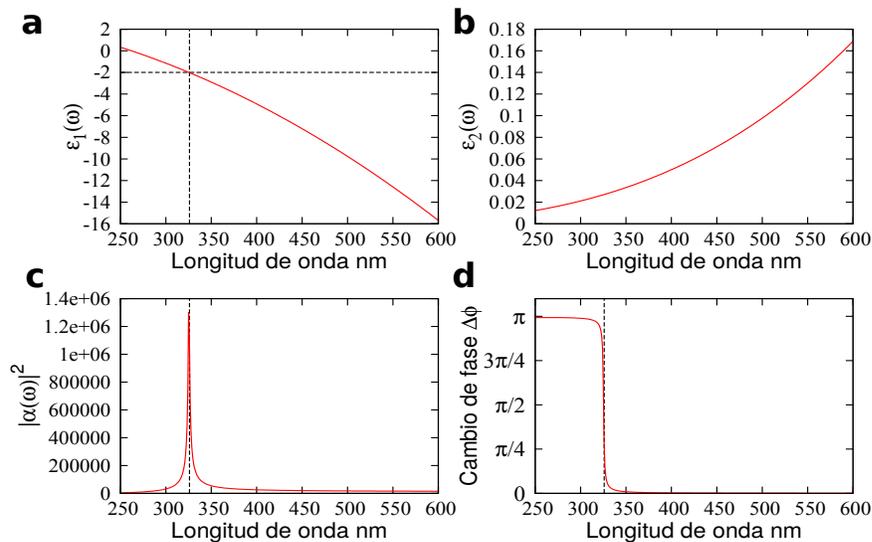
#### 2.4.1. Polarizabilidad cuasiestática

La expresión (34) se conoce como la polarizabilidad cuasiestática, o polarizabilidad en el límite dipolar, ya que bajo este régimen la partícula se puede describir como un dipolo ideal con polarizabilidad  $\alpha(\omega)$ . La polarizabilidad es una medida de la facilidad que tiene un sistema para ser distorsionado por un campo eléctrico externo. En otras palabras, es la capacidad que tiene para separar sus cargas. Como se puede observar la polarizabilidad cuasiestática (34) está en función del tamaño de la esfera  $a$  y de las constantes dieléctricas

$\epsilon_e$  y  $\epsilon_m$ .

Cuando el denominador  $|\epsilon_e + 2\epsilon_m|$  es mínimo, en la condición  $\epsilon_e(\omega) \approx -2$  (con  $\epsilon_m = 1$ , vacío), hay una exaltación tanto del campo interno como del esparcido. Esta condición se asocia con la resonancia del plasmón de superficie de la nanopartícula metálica.

En la figura 4 se presenta la función dieléctrica de Drude [expresión (10)], así como el módulo cuadrado y arcotangente de la polarizabilidad en función de la longitud de onda. Se tomó el caso de una esfera de plata con radio  $R = 10\text{nm}$  que se encuentra embebida en el vacío ( $\epsilon_m = 1$ ). Vemos de la figura 4a que cuando  $\epsilon_1(\omega) \approx -2$ , a una longitud de onda alrededor de  $\lambda \approx 326\text{ nm}$ , se alcanza la condición de resonancia y la polarizabilidad llega a su valor máximo (figura 4c). Es la llamada resonancia del plasmón localizado de superficie (LSPR, por sus siglas en inglés). En la figura 4d vemos que, antes y después de la LSPR, hay una transición abrupta en la fase de  $\alpha(\omega)$ , pasando de  $\pi$  a 0, (figura 4d). Esta variación



**Figura 4:** (a)-(b) Parte real e imaginaria de  $\epsilon_{Drude,real}$ , (c)-(d) módulo cuadrado y arcotangente de  $\alpha(\omega)$ .

abrupta es ocasionado por un cambio de signo en la  $\alpha(\omega)$ . Para longitudes de onda por arriba de LSPR, los cambios la fase están marcados por la componente imaginaria de  $\alpha(\omega)$  que, al sólo contar con  $\epsilon_2(\omega)$  (figura 4b), los desfases son mínimos. En general, dentro de la aproximación cuasiestática, los cambios de fase son independientes del tamaño de la partícula y dependen solamente de la relación entre  $\epsilon_e(\omega)$  y  $\epsilon_m$ , pues éstas determinan el signo y la parte imaginaria de  $\alpha(\omega)$ . Con partículas más grandes, fuera de la aproximación, la situación

puede ser distinta.

Las secciones transversales de extinción y esparcimiento dentro de esta aproximación se relacionan con la polarizabilidad de la siguiente forma [Bohren y Huffman (1983)]

$$C_{ext} = k\Im\{\alpha\}, \quad (41)$$

$$C_{esp} = \frac{k^4}{6\pi} |\alpha|^2. \quad (42)$$

Considerando la sección transversal geométrica de la esfera como  $G = \pi a^2$ , las eficiencias se pueden expresar en términos de las constantes dieléctricas de acuerdo a

$$Q_{ext} = 4x\Im\left\{\frac{\epsilon_e - \epsilon_m}{\epsilon_e + 2\epsilon_m}\right\}, \quad (43)$$

$$Q_{esp} = \frac{8}{3}x^4 \left|\frac{\epsilon_e - \epsilon_m}{\epsilon_e + 2\epsilon_m}\right|^2, \quad (44)$$

donde  $x$  es el parámetro de tamaño.

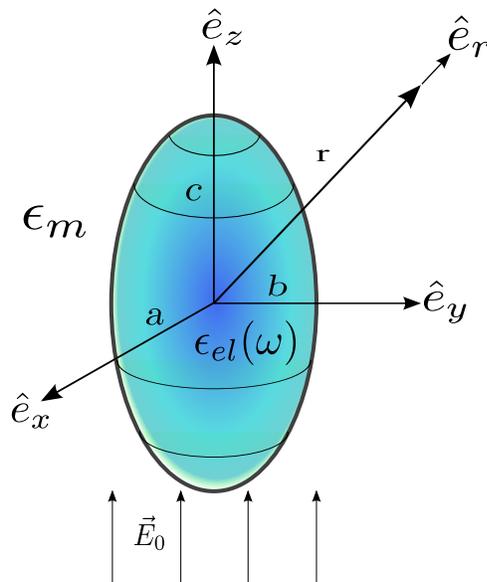
Considerando ahora una geometría un poco más general pero todavía dentro de la aproximación cuasiestática. La partícula consiste de un esferoide con semiejes  $a < b < c$  y una constante dieléctrica  $\epsilon_{el}(\omega)$ . El medio en el que está envuelta es isotrópico, no absorbente con permitividad  $\epsilon_m$  y, al igual que en el caso esférico, consideramos que se encuentra bajo un campo electrostático uniforme ahora a lo largo del eje  $\hat{e}_z$ , como se muestra en la figura 5.

La solución a la ecuación de Laplace,  $\nabla^2\Phi_{out} = 0$ , que describe el potencial eléctrico fuera de la partícula esferoidal se puede expresar como el potencial de un dipolo ideal de la forma [Bohren y Huffman (1983)]

$$\Phi_{out} = \frac{\vec{p} \cdot \vec{r}}{4\pi\epsilon_0\epsilon_m r^3}, \quad (45)$$

con momento dipolar

$$\vec{p} = \epsilon_0\epsilon_m 4\pi abc \frac{\epsilon_{el} - \epsilon_m}{3\epsilon_m + 3L_3(\epsilon_{el} - \epsilon_m)} \vec{E}_0. \quad (46)$$



**Figura 5: Esferoide con semiejes  $a < b < c$  en un campo electrostático uniforme.**

Entonces, la polarizabilidad  $\alpha_3$  del esferoide en un campo paralelo a su eje principal  $\hat{z}$  es

$$\alpha_3(\omega) = 4\pi abc \frac{\epsilon_{el} - \epsilon_m}{3\epsilon_m + 3L_3(\epsilon_{el} - \epsilon_m)}. \quad (47)$$

donde  $L_3$  es un factor geométrico definido como

$$L_3 = \frac{abc}{2} \int_0^\infty \frac{dq}{(c^2 + q)f(q)}, \quad (48)$$

y  $f(q)$  es una función que relaciona las extensiones físicas del esferoide

$$f(q) = \sqrt{(q + a^2)(q + b^2)(q + c^2)}. \quad (49)$$

Se ha tratado el caso donde el campo aplicado es paralelo a lo largo del eje  $\hat{z}$ , si el campo electrostático se orienta a lo largo de los otros dos ejes principales ( $\hat{x}$ ,  $\hat{y}$ ) se tienen las polarizabilidades  $\alpha_1$  y  $\alpha_2$ , con sus correspondientes factores geométricos  $L_1$  y  $L_2$ .

La polarizabilidad cuasiestática del esferoide (47) depende tanto de las dimensiones físicas  $a$ ,  $b$  y  $c$ , así como de las constantes dieléctricas  $\epsilon_{el}(\omega)$ ,  $\epsilon_m$  y del factor geométrico  $L_i$ . Este último juega un papel muy importante en la resonancia del plasmón de superficie debido a que el denominador  $|3\epsilon_m + 3L_i(\epsilon_{el} - \epsilon_m)|$  es mínimo en la condición  $\epsilon_{el}(\omega) \approx 1 - \frac{1}{L_i}$  (con

$\epsilon_m = 1$ , vacío).

Los factores geométricos deben satisfacer que  $\sum L_i = 1$ , en el caso particular de una esfera ( $a = b = c$ ), los tres factores geométrico son iguales  $L_1 = L_2 = L_3 = \frac{1}{3}$ . En ésta situación, tanto la condición de resonancia como la polarizabilidad (47) se reducen a las de una esfera (34).

Una clase de esferoide especial son los esferoides prolatos (o elipsoides de revolución) que se caracterizan por que los dos ejes menores son de igual tamaño y menores al tercero ( $a = b < c$ ). Estas estructuras tienen una resonancias de plasmón de superficie longitudinal y otra transversal, que corresponden a las oscilaciones de los electrones a lo largo del semieje mayor y menor, respectivamente.

### 2.4.2. Polarizabilidad efectiva

Los resultados derivados de la aproximación cuasiestática ayudan a comprender, en una primer instancia, las propiedades ópticas y los fenómenos macroscópicos producidos por partículas en el régimen  $x = ka \ll 1$ . Sin embargo, en esta aproximación, donde el sistema se describe por una polarizabilidad  $\alpha(\omega)$ , el teorema óptico pierde validez cuando se considera que la partícula es de un material no absorbente con  $\Im\{\epsilon(\omega)\} = 0$ , pues en este caso  $\alpha(\omega)$  es real puro y de la expresión (41) tenemos que  $C_{ext} = 0$ , a pesar de que  $C_{esp} > 0$ .

En esta subsección se presenta la polarizabilidad efectiva como una corrección a la polarizabilidad cuasiestática con la finalidad de mantener el teorema óptico válido. Esta corrección algunos autores la nombran como de “reacción de radiación” ( $RR$ ) [Draine (1988); Draine y Goodman (1993); Draine y Flatau (1994); Collinge y Draine (2004); Kats *et al.* (2011)]. Su origen tiene la misma interpretación fenomenológica y parten del hecho de considerar no únicamente la interacción de la partícula con el campo incidente, sino también con su propio campo esparcido dipolarmente.

Al incidir un campo eléctrico externo  $\vec{E}_0(\omega)$  a la partícula, el campo radiado por el dipolo produce campos de interacción hacia atrás,  $\vec{E}_{int}(\omega)$ , estos influyen en el movimiento de los electrones en la partícula. Este efecto produce una fuerza sobre un electrón oscilante que se conoce como la fuerza de Abraham-Lorentz o autofuerza y, de acuerdo a Griffiths (1999),

viene dada por

$$\vec{F}_r(\omega) = e\vec{E}_{int}(\omega), \quad (50)$$

con el campo de interacción definido como

$$\vec{E}_{int}(\omega) = \frac{e\ddot{\vec{x}}}{6\pi\epsilon_0 c^3}. \quad (51)$$

donde  $c$  es la velocidad de la luz en el vacío.

Asumiendo que el electrón se desplaza con un movimiento armónico de la forma  $\vec{x}(\omega) = \vec{x}_0 e^{-i\omega t}$ , entonces  $\ddot{\vec{x}} = i\omega^3 \vec{x}(\omega)$ . Sustituyendo en (51) y expresando el resultado en términos del momento dipolar  $\vec{p}(\omega) = e\vec{x}(\omega)$ , tenemos que

$$\vec{E}_{int}(\omega) = \frac{ik^3}{6\pi\epsilon_0} \vec{p}(\omega), \quad (52)$$

donde  $k = \frac{\omega}{c}$ , el número de onda.

El campo local que ve la partícula es la suma del campo incidente externo  $\vec{E}_0(\omega)$  y el campo propio de interacción  $\vec{E}_{int}(\omega)$ . Entonces, el momento dipolar  $\vec{p}(\omega)$  de una partícula con una polarizabilidad  $\alpha(\omega)$  es de la forma

$$\vec{p}(\omega) = \alpha(\omega) \left[ \vec{E}_0(\omega) + \vec{E}_{int}(\omega) \right]. \quad (53)$$

La polarizabilidad  $\alpha(\omega)$  describe las propiedades de la partícula por sí misma y es la obtenida en la aproximación cuasiestática. Sustituyendo (52) en (53) y agrupando términos semejantes

$$\vec{p}(\omega) \left[ 1 - \frac{ik^3}{6\pi\epsilon_0} \alpha(\omega) \right] = \alpha(\omega) \vec{E}_0(\omega), \quad (54)$$

tenemos que

$$\vec{p}(\omega) = \frac{\alpha(\omega)}{1 - i\frac{k^3}{6\pi\epsilon_0} \alpha(\omega)} \vec{E}_0(\omega), \quad (55)$$

donde podemos expresar la ecuación anterior como  $\vec{p}(\omega) = \alpha_{eff}(\omega) \vec{E}_0(\omega)$ , con

$$\alpha_{eff}(\omega) = \frac{\alpha(\omega)}{1 - i\frac{k^3}{6\pi\epsilon_0} \alpha(\omega)}, \quad (56)$$

la polarizabilidad efectiva.

El resultado anterior difiere del obtenido en la aproximación cuasiestática (34) al incluir el término  $i\frac{k^3}{6\pi\epsilon_0}$ . Esta corrección asegura la conservación del teorema óptico y agrega un desfase entre el campo incidente y el esparcido por la partícula. En el caso del límite de longitudes de onda largas,  $k \rightarrow 0$ , este término se desvanece y recuperamos la polarizabilidad cuasiestática.

Aplicando la corrección de la polarizabilidad efectiva de una esfera de radio  $a$ , sustituyendo (34) en (56),

$$\alpha_{eff}^e(\omega) = 4\pi a^3 \frac{\alpha_0^e(\omega)}{1 - i\frac{2}{3}(ka)^3 \alpha_0^e(\omega)}, \quad (57)$$

donde  $\alpha_0^e(\omega) = \frac{\epsilon_e - \epsilon_m}{\epsilon_e + 2\epsilon_m}$ .

Similarmente, para partículas esferoidales de semiejes  $a < b < c$ , utilizando la expresión (47) tenemos que

$$\alpha_{eff}^{el}(\omega) = 4\pi abc \frac{\alpha_3^{el}(\omega)}{1 - i\frac{2}{3}k^3(abc)\alpha_3^{el}(\omega)}, \quad (58)$$

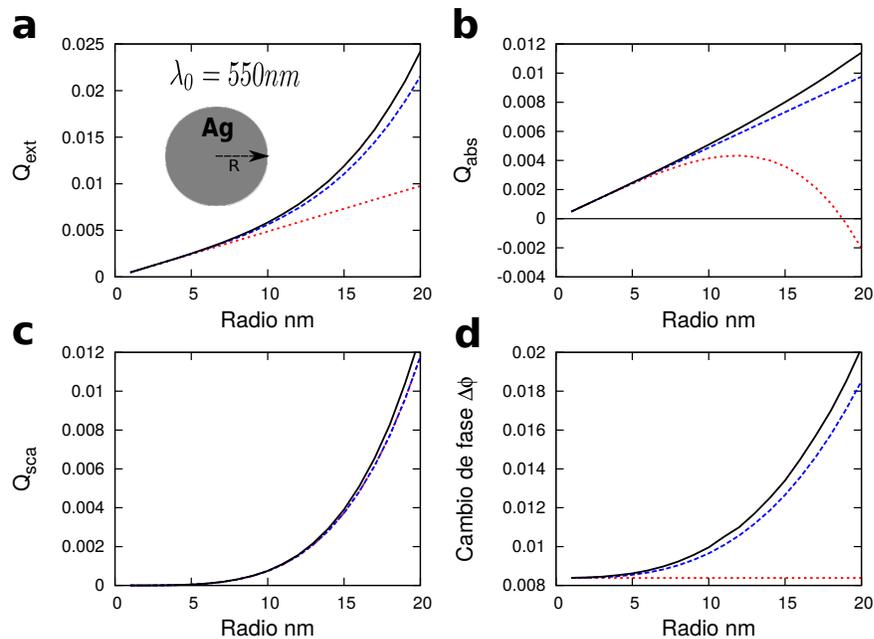
donde  $\alpha_3^{el}(\omega) = \frac{\epsilon_{el} - \epsilon_m}{3\epsilon_m + 3L_3(\epsilon_{el} - \epsilon_m)}$ .

## 2.5. Comparación de los modelos de polarizabilidad

En esta sección presentamos cálculos de las eficiencias de extinción, absorción y esparcimiento, así como los cambios de fase de la onda esparcida por partículas esféricas de plata utilizando los modelos de polarizabilidad cuasiestática (34) y polarizabilidad efectiva (57). Las propiedades ópticas de las partículas esféricas se toman del ajuste lineal a los valores experimentales de Johnson y Christy (1972). Los parámetros  $Q_{ext}$  y  $Q_{esp}$  se calculan de acuerdo a las expresiones (43) y (44) respectivamente, la eficiencia de absorción se calcula a partir de  $Q_{abs} = Q_{ext} - Q_{esp}$ . En todos los resultados de esta sección se comparan con los obtenidos con base a la teoría de Mie en la implementación de Bohren y Huffman (1983).

En la primer comparación se presentan las propiedades de esparcimiento de una esfera de plata en función del radio  $R$  al incidir luz monocromática a  $\lambda_0 = 550\text{nm}$  (figura 6).

Con referencia en la figura 6a, vemos que para radios mayores a 10nm el modelo cuasiestático subestima el valor de  $Q_{ext}$ , esta característica afecta principalmente la eficiencia



**Figura 6:** Comparación de las eficiencia de (a) extinción, (b) absorción, (c) esparcimiento y (d) cambio de fase en función del radio utilizando los modelos: — Mie, - - -  $\alpha_{eff}$ ,  $\cdots$   $\alpha_{qs}$ .

de absorción donde observamos que después de 10nm los valores de  $Q_{abs}$  comienzan a disminuir (figura 6b). La pérdida de precisión de  $Q_{ext}$  se debe a que la condición del régimen cuasiestático  $x \ll 1$  no se cumple para radios  $R > 10$ nm.

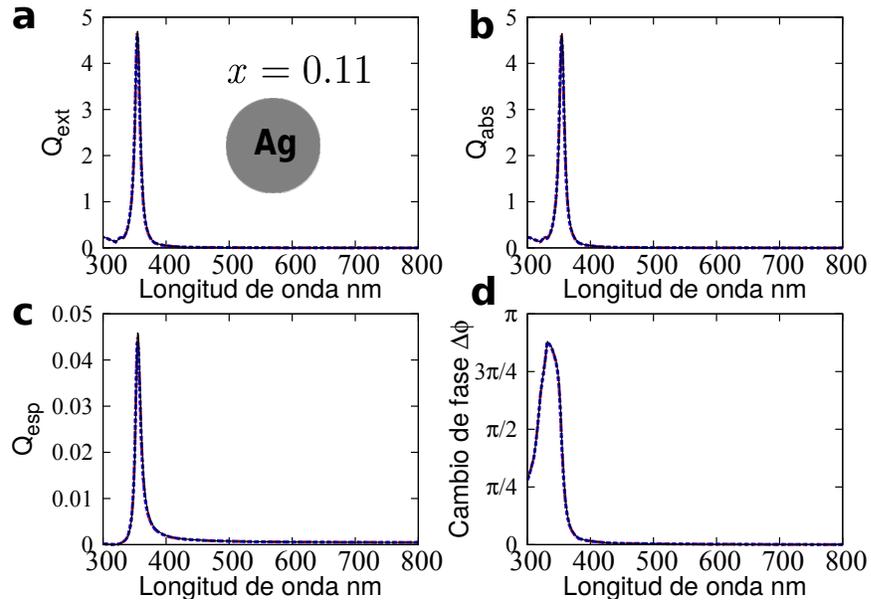
En lo que respecta a los cambios de fase, la figura 6d muestra que el modelo cuasiestático no predice aumentos de fase en las variaciones del radio de la partícula. El modelo de la polarizabilidad efectiva si los tiene, pues la componente imaginaria tiene una dependencia del tipo  $(kR)^3$ . En general, todas las gráficas de la figura 6 se observa que el modelo de la polarizabilidad efectiva tiene un acuerdo razonable con Mie, principalmente dentro del límite dipolar. Fuera de éste, ambos modelos pierden precisión en los resultados, sin embargo; la polarizabilidad efectiva es notablemente superior.

Si observamos las expresiones de las eficiencias

$$Q_{ext} = 4x \Im \left\{ \frac{\epsilon_e - \epsilon_m}{\epsilon_e + 2\epsilon_m} \right\} \quad Q_{esp} = \frac{8}{3} x^4 \left| \frac{\epsilon_e - \epsilon_m}{\epsilon_e + 2\epsilon_m} \right|^2, \quad (59)$$

donde  $x = \frac{2\pi}{\lambda} R$  es el parámetro de tamaño, y  $R$  el radio de la esfera. Ambas mantienen una dependencia espectral que viene de la constante dieléctrica del material  $\epsilon_e(\omega)$ . Para conocer que tan válidas pueden llegar a ser estas expresiones en la región visible del espectro

electromagnético se realizaron cálculos espectrales para dos parámetros de tamaño:  $x = 0.11$  (figura 7) y  $x = 0.57$  (figura 8).



**Figura 7:** Gráficas espectrales de eficiencias de (a) extinción, (b) absorción, (c) esparcimiento y (d) cambio de fase para una esfera con  $x = 0.11$  utilizando los modelos: — Mie, ----  $\alpha_{eff}$ ,  $\cdots$   $\alpha_{qs}$ .

En los cálculos con  $x = 0.11$  (figura 7) no se observan diferencias significativas entre ambos modelos. Sin embargo, para  $x = 0.57$  (figura 8) es claro notar que la polarizabilidad efectiva mejora los resultados en todas las propiedades de esparcimiento, especialmente el de  $Q_{abs}$  (figura 8b) en la región de la resonancia del plasmón localizado de superficie. Por lo anterior, los cálculos presentados en el capítulo 5 se realizan tomando el modelo de polarizabilidad efectiva tanto para esferas como esferoides.

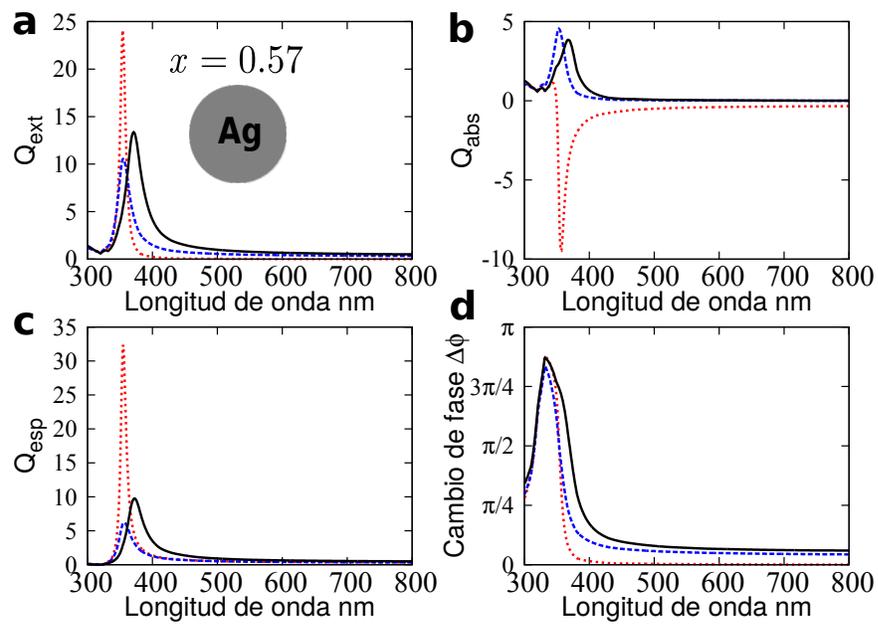
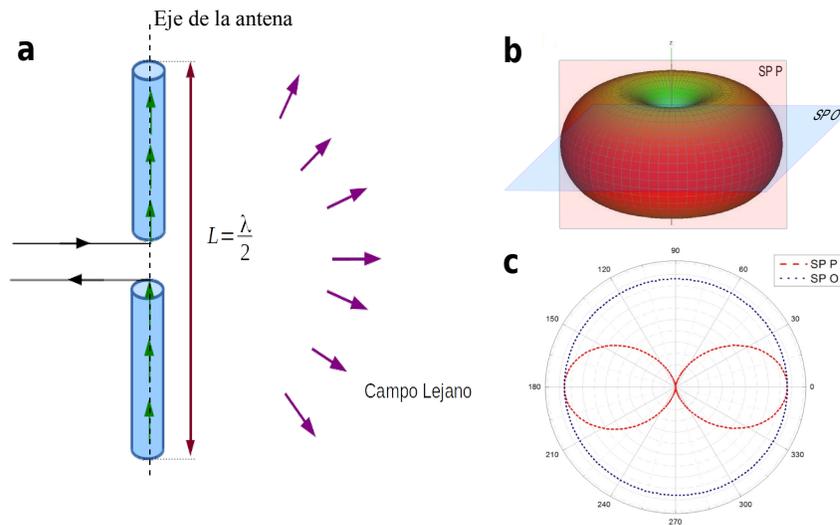


Figura 8: Gráficas espectrales de eficiencias de (a) extinción, (b) absorción, (c) esparcimiento y (d) cambio de fase para una esfera con  $x = 0.57$  utilizando los modelos: — Mie, ----  $\alpha_{eff}$ ,  $\cdots$   $\alpha_{qs}$ .

## Capítulo 3. Nanoantenas y metasuperficies

La palabra antena es un término utilizado ampliamente en el campo de ingeniería y comunicación. El Instituto de Ingeniería Eléctrica y Electrónica (IEEE por sus siglas en inglés) la define como “la parte de un sistema de transmisión o recepción que está diseñado para emitir o recibir ondas electromagnéticas” [IEEE Std 145-1983 (1983)]. Actualmente las antenas son fundamentales en aparatos de radiodifusión o microondas. Televisiones, celulares, geolocalizadores o cualquier otro instrumento inalámbrico utiliza antenas para llevar a cabo su función.

Una de las antenas comúnmente utilizadas en radiofrecuencias y microondas es la antena dipolo de media onda, consiste en un hilo conductor de la mitad de longitud a la frecuencia de operación  $L = \lambda/2$ , seccionado por la mitad en cuyo centro se coloca una línea de transmisión o un generador (ver figura 9a).



**Figura 9:** (a) Antena dipolar de media longitud de onda indicando la circulación de corriente sobre el conductor y la emisión de radiación en campo lejano. (b) Patrón angular de esparcimiento en campo lejano, (c) planos de esparcimiento (SP, por sus siglas en inglés) en direcciones paralela (SP P) y ortogonal (SP O) al eje de la antena

La mayoría de las antenas en radiofrecuencia son diseñadas para operar en la región de campo lejano, donde la componente radial del campo es despreciable y las demás se pueden aproximar a ondas transversales electromagnéticas. La figura 9b muestra la distribución espacial o patrón de radiación de los campos de una antena dipolar de media onda. En la figura

9c se presentan planos de esparcimiento (SP, por sus siglas en inglés) en direcciones paralela (“SP P”) y ortogonal “SP O” al eje de la antena.

La antena de media onda es la más sencilla de todas ya que su longitud característica  $L$  está relacionada directamente con la frecuencia de operación  $L = const \times \lambda_0$ . Por ejemplo, una antena dipolo de media onda que es utilizada para la transmisión de televisión HD, que opera a 600 MHz ( $\lambda_0 = 50$  cm), tiene una longitud característica de  $L = 25$  cm. Las antenas de telefonía celular de 4ta generación LTE, con operación en la banda de 2100 MHz ( $\lambda_0 \approx 14$  cm), tienen una longitud característica de  $L \approx 7$  cm aproximadamente.

### 3.1. Nanoantena dipolo y escalamiento con la longitud de onda

La nanofotónica recolecta esta idea a través de las antenas ópticas o nanoantenas, que son dispositivos capaces de emitir o recibir radiación electromagnéticas y que además la concentran en dimensiones más pequeñas que la longitud de onda. Aunque los diseños de nanoantenas están inspirados por los desarrollos de radio y microondas, es de esperarse que las diferencias en los fenómenos físicos demanden la búsqueda de geometrías originales y materiales alternos, especialmente en la región visible del espectro electromagnético, donde el metal se comporta como un plasma fuertemente acoplado y las nanoantenas no responden directamente a la longitud de onda externa como en radiofrecuencia.

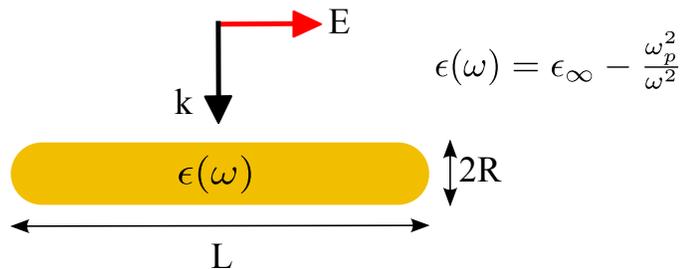
Dentro de cualquier estructura de conductor perfecto, siendo la permitividad infinita, los campos eléctricos tienden a cero y la densidad de corriente circula únicamente en las superficies de la estructura. El hecho de que la permitividad sea finita en el visible e infrarrojo hace que los metales no se comporten como conductores perfectos, permitiendo que el campo penetre algunos nanómetros dentro el metal. En algunos casos esta penetración puede ser comparable con el tamaño característico de la antena. Esta propiedad, aunada a los efectos inducidos por la excitación de plasmones de superficie, determinan la respuesta propia de las estructuras nanométricas metálicas.

Para unificar la teoría clásica de antenas con los fenómenos observados en nanoantenas ópticas, Novotny (2007) propuso reemplazar  $\lambda_0$  por una longitud de onda menor denominada

longitud de onda efectiva,  $\lambda_{eff}$ , que puede ser calculada de acuerdo a

$$\lambda_{eff} = \left( n_1 + n_2 \frac{\lambda_0}{\lambda_p} \right) 2R, \quad (60)$$

donde  $\lambda_p$  es la longitud de onda de plasma y  $n_1$ ,  $n_2$  son constantes que dependen de las propiedades del material. En la derivación de la expresión anterior el autor considera una barra cilíndrica de longitud  $L$  y radio  $R \ll L$  con extremos redondos y una función dieléctrica  $\epsilon(\omega)$  descrita por el gas de electrones libres despreciando la disipación (ver figura 10).



**Figura 10:** Representación de una nanoantena con constante dieléctrica  $\epsilon(\omega)$ , diámetro  $2R$  y longitud característica  $L$ . La dirección de incidencia es normal al eje de la nanoantena y la polarización es a lo largo del eje de simetría.

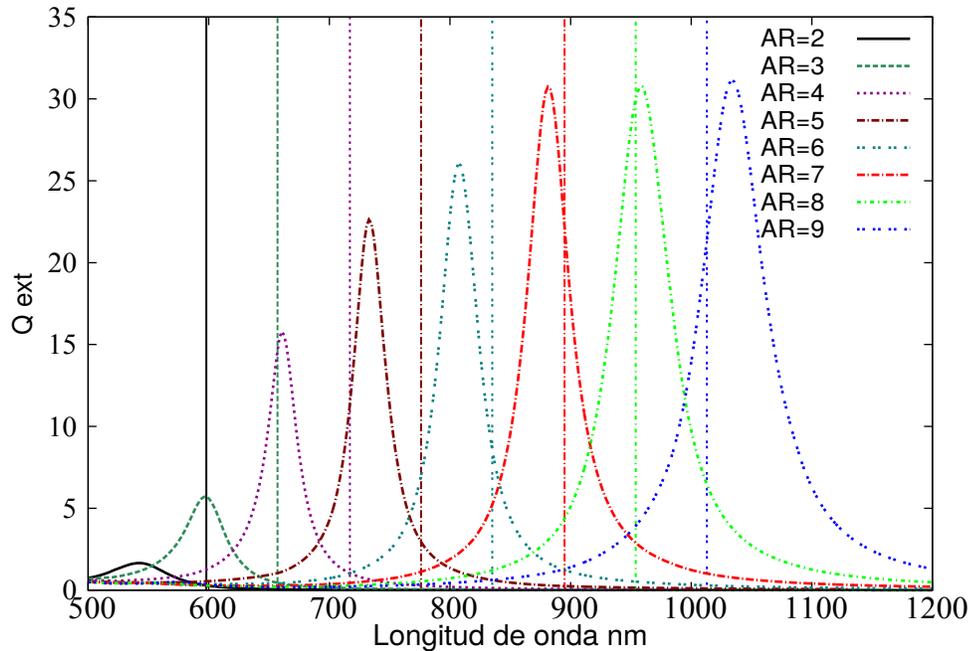
En la condición de resonancia de una antena de media onda  $L = \frac{\lambda_{eff}}{2} = \left( \frac{n_1}{2} + \frac{n_2}{2} \frac{\lambda_r}{\lambda_p} \right) 2R$ , la longitud de onda de resonancia,  $\lambda_r$ , se puede expresar en términos de un parámetro llamado relación de aspecto ( $AR$ , por sus siglas en inglés) definido como  $AR = \frac{L}{2R}$ . Por lo tanto tenemos que

$$\lambda_r = (2AR - n_1) \frac{\lambda_p}{n_2}. \quad (61)$$

La longitud de onda de resonancia sigue una relación lineal con  $AR$ , que además se puede escalar dependiendo del cociente  $\frac{\lambda_p}{n_2}$ . La relación de aspecto es una cantidad que describe la proporción entre lo largo y ancho del cilindro, indica cuantas veces es más extenso a lo largo de su eje de simetría en comparación con su diámetro.

Utilizando el modelo anterior para estimar la longitud de onda de resonancia de nanobarras con relación de aspecto creciente (de  $AR = 2$  a  $AR = 9$ ) manteniendo un radio constante  $R = 5$  nm y utilizando los valores del modelo de Drude del oro de acuerdo a Novotny (2007), tenemos que  $n_1 = -16.15$ ,  $n_2 = 4.65$  y  $\lambda_p \approx 138$  nm.

La figura 11 muestra con líneas verticales las longitudes de onda de resonancia estimadas por (61). En la misma figura se superponen las curvas espectrales de las eficiencias de extinción calculadas con el método DDA utilizando como función dieléctrica el ajuste lineal a los valores experimentales de Johnson y Christy (1972).



**Figura 11:** Curvas espectrales de las eficiencias de extinción en nanobarras de radio constante,  $R = 5$  nm, y relación de aspecto creciente. Las líneas verticales muestran la estimación de acuerdo al modelo (61).

Es claro de la figura 11 que las resonancias del plasmón localizado de superficie tienen un corrimiento al infrarrojo al aumentar la longitud de la barra. Esto se debe esencialmente a que las antenas basan su operación en la interferencia constructiva de las ondas excitadas en la barra, que producen una resonancia cuando  $L = \frac{\lambda_{eff}}{2}$ .

Es de esperarse diferencias entre la longitud de onda de resonancia estimada por la expresión (61) y la obtenida con el método riguroso del DDA, éstas debido principalmente en la diferencia de los modelos de función dieléctrica utilizados (ver figura 12). El desarrollo propuesto por Novotny (2007) sólo considera la parte real de la función dieléctrica del gas de electrones libres (figura 12a) omitiendo las pérdidas por disipación (figura 12b), mientras que el método DDA considera ambas.

En la tabla 2 se recopilan las longitudes de onda de resonancia estimadas con el modelo

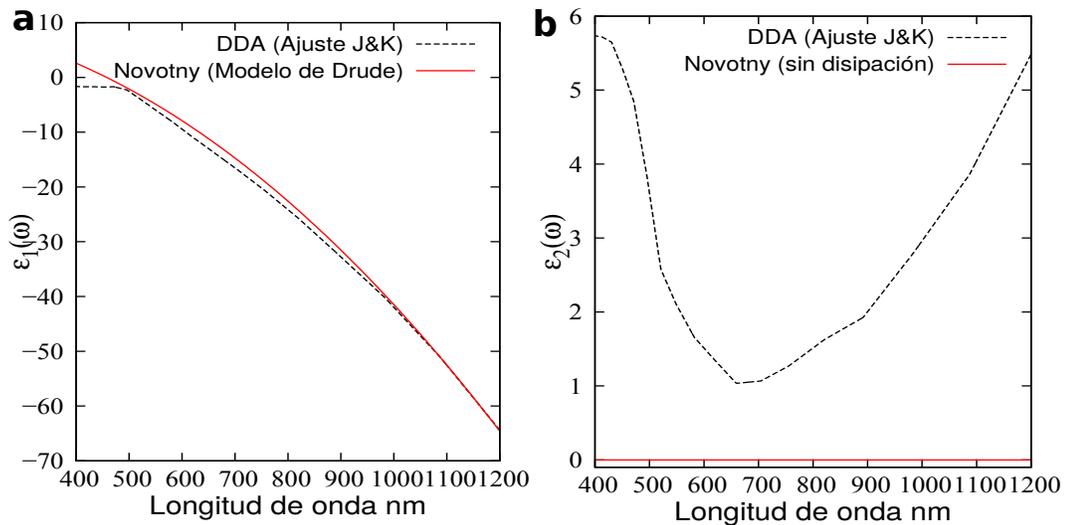


Figura 12: (a) Parte real e (b) imaginaria de la función dieléctrica utilizada en el método DDA (----) y la considerada por Novotny (2007) (—).

(61) y las obtenidas con el método DDA para las diferentes nanobarras. De las últimas dos columnas vemos que la mayor diferencia se encuentra en nanobarras pequeñas, donde podemos pensar que la condición  $R \ll L$  no se cumple. En antenas de mayor tamaño, la diferencia se puede atribuir al corrimiento de la resonancia del plasmón de superficie localizado al infrarrojo, donde las pérdidas por disipación son mayores y la expresión (61) no las toma en cuenta.

Tabla 2: Estimación de resonancia utilizando la expresión (61) y el método DDA en nanobarras con relación de aspecto creciente.

Longitud antena L nm	Relación de aspecto $AR = \frac{L}{2R}$	Longitud de onda de resonancia	
		Novotny (2007) $\lambda_{res}$ nm	$\lambda_{DDA}$ nm
20	2	598	542
30	3	657	596
40	4	717	660
50	5	776	732
60	6	835	807
70	7	895	881
80	8	954	959
90	9	1013	1033

### 3.2. Metasuperficies

Un arreglo periódico, uni- o bidimensional, de nanoantenas sobre una superficie plana forma una metasuperficie cuya respuesta macroscópica puede modificar la amplitud, la fase y la polarización de los rayos de luz que se reflejan y/o transmiten a través de ella. Para el diseño de estas metasuperficies la principal exigencia está en tener un control completo de fase (0 a  $2\pi$ ) de la radiación esparcida por cada nanoantena.

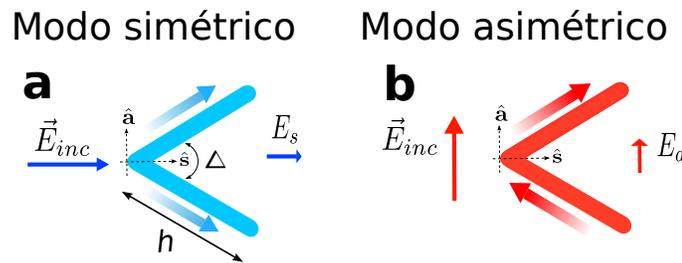
En investigaciones recientes, se ha demostrado la funcionalidad de las metasuperficies como placas retardadoras [Yu *et al.* (2012); Pors y Bozhevolnyi (2013a)], rejillas [Sun *et al.* (2012)], espejos enfocadores [Pors *et al.* (2013)] y placas productoras de vórtices ópticos [Yu *et al.* (2011)], por mencionar algunos. Sin embargo, la característica más atractiva recae en la habilidad de diseñar metasuperficies con variaciones de fase lineales birrefringentes, proporcionando una funcionalidad que no es posible obtener con componentes de óptica convencional.

Para alcanzar el intervalo de fase completo se han propuesto en la literatura un par de metodologías. La primera involucra estructuras plasmónicas tipo "V". Si bien no son formalmente nanoantenas ópticas, pues las estructuras tienen escalas micrométricas y una longitud de onda de operación de  $\lambda_0 = 8\mu\text{m}$ , fueron los primeros diseños de metasuperficies que demostraron experimentalmente las leyes de reflexión y refracción generalizadas. La segunda propuesta, un poco más limitada por operar sólo en reflexión, utiliza segmentos de películas de metal-aislante-metal, que soportan plasmones de superficie de rendija (GSP, por sus siglas en inglés). Estas estructuras fueron diseñadas para una longitud de onda de  $\lambda_0 = 800\text{ nm}$  en geometrías de nanotabiques y nanocruces. A continuación se presentan de manera más detallada las características de ambas estructuras.

#### 3.2.1. Antenas en "V"

Al menos en el contexto de los metamateriales, el primer trabajo teórico que derivó la ley de reflexión y refracción generalizada fue el presentado por Yu *et al.* (2011). Con un tratamiento matemático basado en el principio de mínima acción (ó principio de Fermat), estos autores derivaron tres ecuaciones simples que describen la reflexión y refracción anómala y, que en principio, pueden aplicarse en la totalidad del espectro óptico.

Para generar metasuperficies con el tipo de características deseadas, utilizaron la propiedad de doble resonancia en antenas tipo “V”, que consisten en dos segmentos rectos de igual longitud  $h$ , conectados en un extremo, formando un ángulo  $\Delta$  entre ellos (figura 13). Las resonancias dipolares de estas antenas ocurren cuando  $\lambda_0 = 2h$  y  $\lambda_0 = 4h$ . Con referencia a la figura 13a, vemos que la primera se asocia a un modo simétrico que es excitado por un campo eléctrico que es paralelo al eje de simetría  $\hat{s}$  de la nanonatena. En esta situación el campo genera corrientes en cada uno de los brazos de la nanoantena. La segunda resonancia, ilustrada en la figura 13b, ocurre cuando el campo incidente está en la dirección denotada por  $\hat{a}$ , que es perpendicular a  $\hat{s}$ . En este caso se excita un modo asimétrico y la corriente fluye como si la “V” estuviera desdoblada y se tratara de un solo segmento recto de longitud  $2h$ .



**Figura 13:** Excitación del modo (a) simétrico y (b) asimétrico de una antena en “V” con brazos de longitud  $h$  que forman un ángulo  $\Delta$  entre ellos.

Cuando el campo eléctrico incidente tiene un estado de polarización lineal paralela a  $\hat{s}$  o  $\hat{a}$ , el campo esparcido conserva el estado de polarización incidente ( $E_s$  y  $E_a$  en figura 13). Por otro lado, si el campo eléctrico incide linealmente con cualquier otra orientación, será necesario descomponerlo a lo largo de estas dos direcciones ( $\hat{s}$  y  $\hat{a}$ ) y, dado que la respuesta a cada componente tendrá amplitud y fase propia, cada modo generará campo eléctrico en dirección a su eje y el campo total esparcido tendrá un estado de polarización que en general es elíptico.

Con la finalidad de conseguir que la luz esparcida con polarización ortogonal a la del campo incidente sea significativa, se establece una polarización incidente a  $45^\circ$  respecto a  $\hat{s}$  y  $\hat{a}$  como se muestra en la figura 14, de manera que se excitan los dos modos y la radiación con polarización cruzada es considerable.

Con esta característica en la forma de excitación y los dos grados de libertad que permite

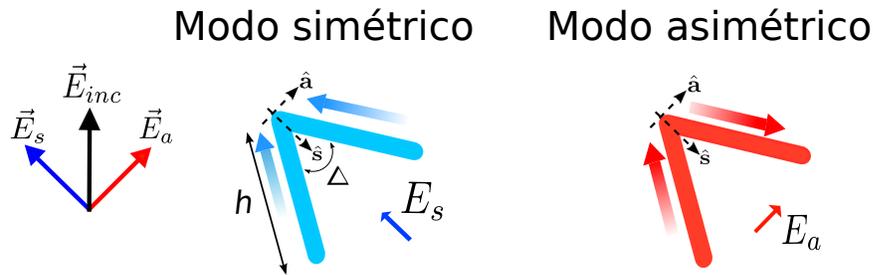


Figura 14: Antenas en “V” con excitación a  $45^\circ$  respecto a  $\hat{s}$  y  $\hat{a}$ .

la geometría ( $h$  y  $\Delta$ ), estos autores lograron controlar, en un amplio intervalo, la amplitud y fase de la luz esparcida para una polarización ortogonal a la del campo incidente como ilustran las figuras 15a,b, respectivamente.

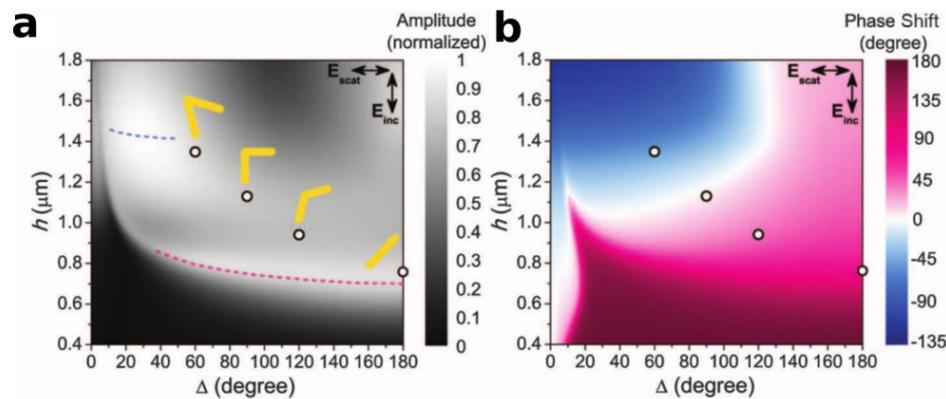


Figura 15: (a) Amplitud y (b) fase de la luz esparcida para una polarización ortogonal a la del campo incidente en función de  $h$  y  $\Delta$  a una longitud de onda  $\lambda_0 = 8\mu\text{m}$ . Tomada de la referencia Yu *et al.* (2011).

Los círculos marcados en la figura 15 corresponden a las antenas con amplitud de esparcimiento igual y los cambios de fase en el rango de  $0$  a  $\pi$ . Para conseguir los cambios de fase en el completo rango de  $2\pi$  entre la luz incidente y la luz esparcida se utiliza la estructura espejo de una antena en “V”, la cual consiste en rotar los ejes de la antena un ángulo de  $90^\circ$  en sentido opuesto a las manecillas del reloj como se muestra en la figura 16. Esta variación en la orientación aporta un cambio de fase de  $\pm\pi$  en la componente con polarización ortogonal.

En la figura 17 se presenta el diseño del gradiente de fase utilizado por Yu *et al.* (2011). Como se puede observar las últimas cuatro antenas corresponden a las imágenes espejo de las

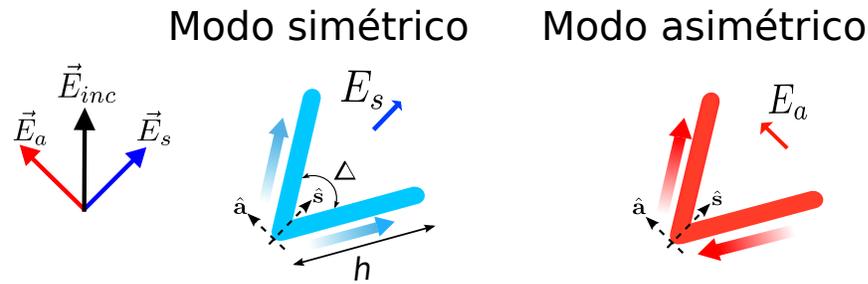


Figura 16: Antenas espejo de la figura 14.

primeras. A este diseño de gradientes de fase los autores le llaman células (o supercélulas), debido a que son patrones que se repiten a lo largo y ancho de la superficie.



Figura 17: Gradiente de fase compuesto por ocho nanoantenas tipo “V” con amplitud de espaciamiento igual y diferencia de fase  $\Delta\Phi = \frac{\pi}{4}$  entre antenas vecinas. Tomada de la referencia Yu *et al.* (2011).

La metasuperficie fabricada con las nanoantenas tipo “V” se muestra en la figura 18, la periodicidad de la supercélula es de  $\Lambda_{sc} = 11\mu\text{m}$  en dirección al eje  $x$  y  $1.5\mu\text{m}$  en  $y$ .

La condición de polarización cruzada en la operación de estas metasuperficies establece un límite máximo en la eficiencia del dispositivo. Se han diseñado una gran variedad de componentes novedosos utilizando estos arreglos de fase. Sin embargo, aún existen desafíos importantes y problemas que resolver para mejorar o diversificar su operación. Algunos de ellos se mencionan a continuación:

- Mejorar la eficiencia. La fracción de la potencia incidente que sigue la reflexión y refracción generalizada es muy baja.
- Dispositivos que operen en otras frecuencias del espectro electromagnético. La operación de estos dispositivos está basada en resonancias angostas, funcionan en un intervalo cercano a la longitud de onda  $\lambda_0 = 8\mu\text{m}$ . A frecuencias ópticas estos diseños no escalan debido a las propiedades del material.

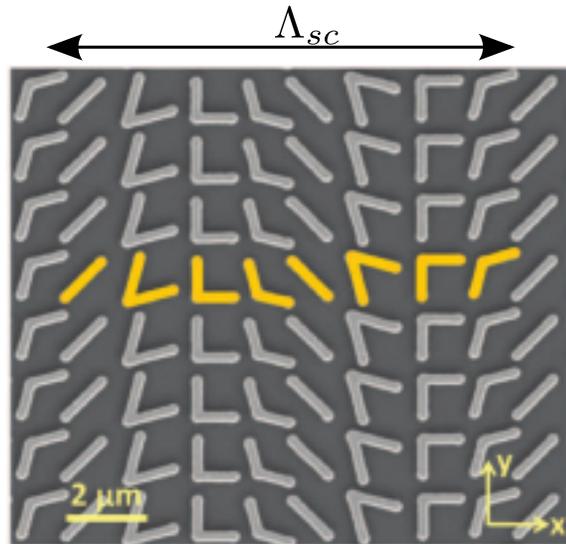


Figura 18: Imagen de un microscopio electrónico de barrido (SEM) de la metasuperficie utilizada para demostrar la Ley generalizada. Se resalta esquemáticamente el diseño de la supercélula. Tomada de la referencia Yu *et al.* (2011).

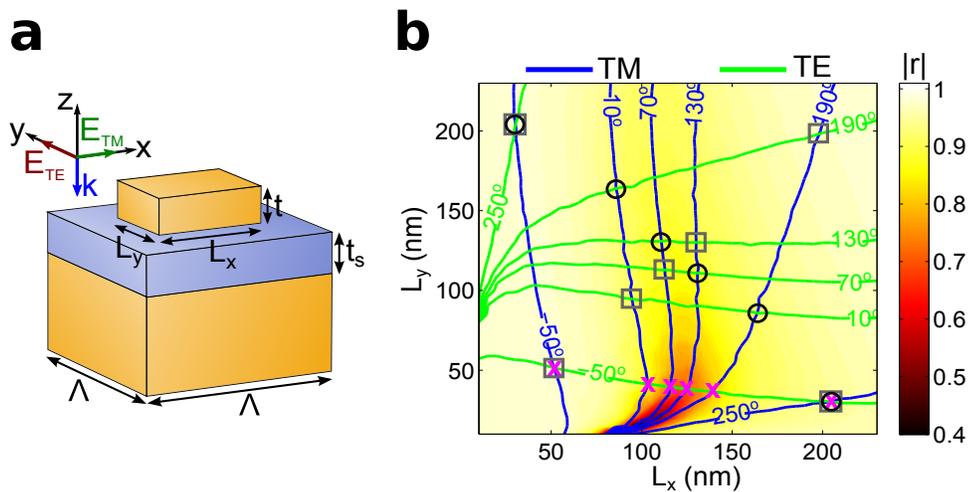
### 3.2.2. Estructuras GSP

Una propuesta alternativa para la elaboración de metasuperficies fue presentado por Pors y Bozhevolnyi (2013b). Con un diseño basado en estructuras compuestas por capas de metal-aislante-metal en forma de nanotabiques y nanocruces, estos autores mostraron que es posible controlar la amplitud y fase de la luz reflejada por los elementos plasmónicos propuestos, destacando el control independiente de fase para polarizaciones TE y TM.

Con referencia a la figura 19a, vemos que la geometría de las nanoantenas presentadas tiene dos grados de libertad ( $L_x$  y  $L_y$ ) y con los que es posible sintonizar resonancias para los plasmones polaritones de superficie de rendija que se excitan dentro de la placa. Los nanotabiques se encuentran sobre una placa separadora de vidrio de espesor  $t_s$  y un sustrato de oro. Dado que se tratan de estructuras periódicas, las longitudes  $L_x$  y  $L_y$  máximas están determinadas por la periodicidad  $\Lambda$  (ver figura 19a).

La figura 19b muestra la amplitud del coeficiente de reflexión para polarización TM en función de los dos grados de libertad de un nanotabique con espesor  $t = t_s = 50\text{nm}$  y una placa con periodicidad  $\Lambda = 240\text{nm}$  a  $\lambda_0 = 800\text{nm}$ . En la misma figura se trazan líneas que representan contornos de fase constante para ambas polarizaciones (TE y TM).

Las propiedades de la estructura GSP para el control de la fase en la luz reflejada se pueden explicar de la siguiente forma: retomando la figura 19b y los contornos de fase con polarización TM. Vemos que al pasar por una resonancia, cuando la longitud  $L_x \approx 100$  nm, además de una alta absorción de luz, se observa que la fase cambia rápidamente en un rango de  $\pi$  radianes (contornos de  $10^\circ$  y  $190^\circ$ ). Alejados de resonancia, en longitudes  $L_x$  pequeñas, el retardamiento en la fase (contorno de  $-50^\circ$ ) se asocia principalmente por el tiempo de propagación que tarda la onda para llegar al sustrato de oro y reflejarse. En longitudes  $L_x$  grandes, la fase (contorno de  $250^\circ$ ) se debe principalmente a los procesos de acoplamiento y desacoplamiento al plasmón de superficie que experimenta la onda incidente.



**Figura 19:** (a) Dibujo esquemático de un nanotabique de oro de longitud  $L_x$  y  $L_y$  sobre una placa separadora de vidrio con espesor  $t_s$  y un sustrato de oro. (b) coeficientes de reflexión para  $\Lambda = 240$ nm,  $t = t_s = 50$ nm y  $\lambda_0 = 800$ nm. Las líneas muestran contornos de fase constante. Tomada de la referencia Pors y Bozhevolnyi (2013b)

Con esta propiedad del GSP y los dos grados de libertad  $L_x$  y  $L_y$  se logra controlar la luz reflejada con polarización TM y TE de forma independiente y diferente. Para demostrar lo anterior, los autores diseñaron tres gradientes de fase lineal, en todos ellos establecieron cambios de fase  $\Delta\Phi = \pi/3$ . En cada paso del gradiente se colocaron dos nanotabiques, por lo que la periodicidad de la supercélula fue de  $\Lambda_{sc} = 12\Lambda$  (ver figura 20).

Antes de continuar con la descripción de los efectos anómalos producidos por estos diseños, es conveniente aclarar un poco la terminología utilizada y su relación con efectos de difracción conocidos. El ángulo que sigue la luz reflejada anómalamente en una metasuperficie con un gradiente de fase lineal, depende de la razón de cambio de la fase dentro de la supercélula

$\frac{d\Phi}{dx}$ . En el supuesto caso de reemplazar la metasuperficie por una rejilla de difracción con periodicidad  $\Lambda_{sc}$ , el ángulo del primer orden de difracción sería el mismo que el de la reflexión anómala. Sin embargo, a diferencia de la rejilla, la metasuperficie solamente acopla la luz en el primer orden ( $\pm 1$ ) dependiendo si el gradiente es creciente ( $+1$ ) o decreciente ( $-1$ ).

Siguiendo con la terminología de rejillas, en todas las supercélulas elaboradas con nanotabiques la reflexión de las ondas TM fue en dirección al primer orden  $+1$ , mientras que la reflexión anómala de las ondas TE fue manipulada en cada diseño:

1. Divisor de polarización. Se separan las polarizaciones TM y TE en los ordenes de difracción  $\pm 1$ , respectivamente. La luz que incide con polarización TM encuentra un gradiente positivo lo que hace que se refleje en el orden  $+1$ , mientras que la luz con polarización TE ve un gradiente negativo y su reflexión es en el orden  $-1$ . Los valores de  $L_x$  y  $L_y$  se muestran en círculos negros de la figura 19b y el arreglo de los nanotabiques en la figura 20a.
2. Divisor de polarización con el modo TE en la dirección especular. Se mantiene el gradiente positivo para la polarización TM y se anula el gradiente (los nanotabiques no producen cambios de fase) para las ondas TE, lo cual hace que la componente con esta polarización se refleje especularmente. Los valores de  $L_x$  y  $L_y$  de los nanotabiques se muestran con cruces rosas en la figura 19b y el arreglo de los nanotabiques en la figura 20b.
3. Reflexión independiente de la polarización. En este caso, se mantienen ambas polarizaciones TM y TE en el orden  $+1$ . Con referencia en los cuadrados grises de la figura 19b, todos los contornos de misma fase para ambas polarizaciones se cruzan excepto en la fase de  $250^\circ$ , por lo que en el último par de nanotabiques se colocó el correspondiente para cada polarización (ver figura 20c).

Aunque este tipo de metasuperficies con fondo metálico sólo funciona en modo de reflexión la principal ventaja son su alta eficiencia de la luz controlada, alcanzando hasta del 100 % en el caso de pérdidas de material nulas y del 50 % en el peor de los casos.

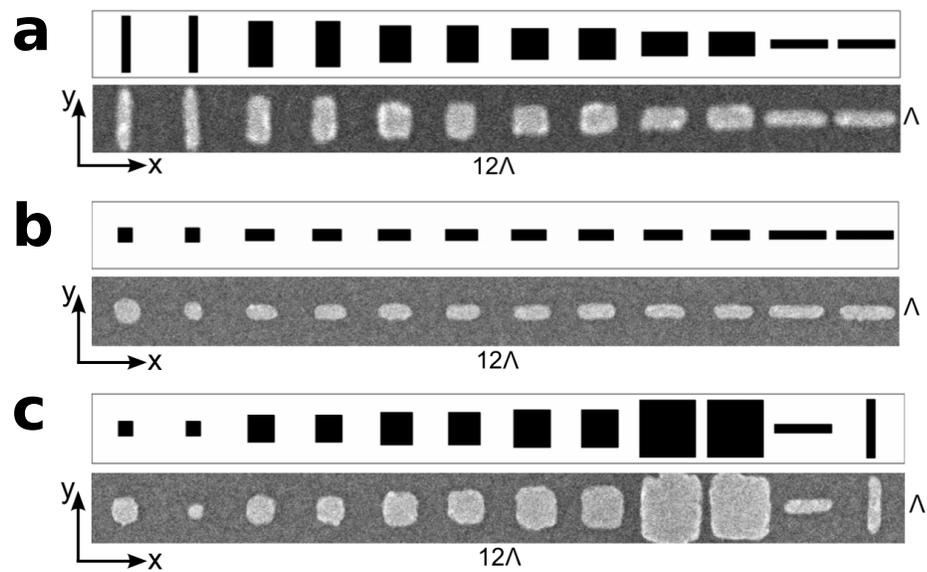


Figura 20: Diseños de supercélulas con nanotabiques. (a) Divisor de polarización, (b) divisor de polarización con TE en dirección especular y (c) reflexión independiente de la polarización. Tomada de la referencia Pors y Bozhevolnyi (2013b)

## Capítulo 4. La aproximación de dipolos discretos

---

La interacción de luz con partículas pequeñas es un fenómeno que ocurre en muchas situaciones prácticas y su comprensión es importante para explicar fenómenos naturales y desarrollar nuevas aplicaciones tecnológicas. Solamente en algunos casos sencillos, que involucran geometrías especiales como esferas, esferoides y cilindros infinitos, ha sido posible obtener resultados analíticos. Para otras geometrías es necesario recurrir a métodos numéricos, tales como el de la Matriz T, el de diferencias finitas en el dominio del tiempo (FDTD, por sus siglas en inglés), el de diferencias finitas en el dominio de la frecuencia (FDFD, por sus siglas en inglés), o el de la aproximación de dipolos discretos (DDA, por sus siglas en inglés), entre otros.

El DDA es un método de elemento finito cuyos fundamentos físicos se basan en la idea de que la materia está compuesta de moléculas que pueden polarizarse en presencia de un campo externo, y que esto da origen al comportamiento macroscópico que se observa cuando interactúa la luz con una partícula de un medio homogéneo. Con este principio el método DDA modela el esparcimiento de partículas que van desde dimensiones nanométricas hasta arreglos de partículas micrométricas. La idea básica del método fue introducida por DeVoe Devoe (1964) y, posteriormente, en 1973, Purcell y Pennypacker lo retomaron incluyendo efectos de retardo.

El DDA reemplaza entonces el medio continuo que compone la partícula por un arreglo de puntos polarizables que son excitados tanto por el campo incidente como por la radiación de otros dipolos. El problema de esparcimiento es resuelto considerando este arreglo de entidades polarizables acopladas. La principal ventaja del DDA es la flexibilidad que ofrece en lo que respecta a la geometría y la composición de las partículas, estando limitado únicamente por la separación entre dipolos  $d$ , la cual debe ser menor a cualquier estructura longitudinal ó transversal de la partícula y menor a la longitud de onda de la radiación que incide sobre ella.

Las entidades polarizables son básicamente dipolos eléctricos localizados en posiciones  $\vec{r}_j$ , donde  $j = 1, \dots, N$ , con  $N$  el número total de dipolos en el arreglo. El método permite resolver el problema de esparcimiento con cualquier tipo de campo incidente, pero por simplicidad,

usaremos una onda plana de la forma  $\vec{E}_{inc,j} = \vec{E}_0 \exp(i\vec{k} \cdot \vec{r}_j - i\omega t)$ .

Cada dipolo se caracteriza por una matriz simétrica de polarizabilidad  $\alpha_j$  que, después de tomar en cuenta todas las interacciones, debe describir las características macroscópicas de la materia. El campo total  $\vec{E}_{tot,j}$  sobre el dipolo  $j$  está dado por la suma del campo eléctrico incidente y el generado por todos los demás  $(N - 1)$  dipolos. Es decir que

$$\vec{E}_{tot,j} = \vec{E}_{inc,j} - \sum_{k \neq j} \mathbf{A}_{jk} \vec{p}_k, \quad (62)$$

donde

$$\vec{p}_j = \alpha_j \vec{E}_{tot,j}, \quad (63)$$

es el momento dipolar del dipolo  $j$  y  $\mathbf{A}_{jk}$  es una matriz de dimensiones  $3 \times 3$  que representa la interacción entre parejas de dipolos, uno emisor en la posición  $\vec{r}_k$  y otro receptor en la posición  $\vec{r}_j$ . La matriz de interacción se relaciona con el tensor de Green  $\mathbf{G}_{jk}$  del campo eléctrico para una radiación dipolar de acuerdo a  $\mathbf{A}_{jk} = k^2 \mathbf{G}_{jk}$ .

Si la partícula es isotrópica, las componentes diagonales de la matriz de polarizabilidad  $\alpha_j$  son iguales y podemos tratar a  $\alpha_j$  como una cantidad escalar  $\alpha_j$ . Construimos entonces un sistema de ecuaciones de la forma

$$\vec{E}_{inc,j} = \frac{1}{\alpha_j} \vec{p}_j + \sum_{k \neq j} \mathbf{A}_{jk} \vec{p}_k. \quad (64)$$

Vemos también que si modificamos la definición de la matriz  $\mathbf{A}_{jk}$  para incluir una diagonal con elementos  $\alpha_j^{-1}$ , obtenemos una matriz  $\tilde{\mathbf{A}}_{jk}$  y podemos escribir la ecuación matricial

$$\sum_{j=1}^N \tilde{\mathbf{A}}_{jk} \vec{p}_j = \vec{E}_{inc,j}. \quad (65)$$

El problema se reduce entonces a encontrar las componentes  $p_x$ ,  $p_y$  y  $p_z$  de los momentos dipolares  $\vec{p}_j$ , formando un sistema de  $3N$  ecuaciones lineales inhomogéneas complejas. Una vez resuelto el sistema, es posible calcular las propiedades de esparcimiento de la partícula, tales como la distribución angular del campo esparcido, las secciones transversales, y la matriz de esparcimiento.

En particular, las expresiones para encontrar las secciones transversales de extinción, absorción y esparcimiento en función de los momentos dipolares  $\vec{p}_j$  están dadas por [Draine (1988)]

$$C_{ext} = \frac{4\pi k}{|E_{inc}|^2} \sum_{j=1}^N \Im(E_{inc,j}^* \cdot \vec{p}_j), \quad (66)$$

$$C_{abs} = \frac{4\pi k}{|E_{inc}|^2} \sum_{j=1}^N \left\{ \Im [\vec{p}_j \cdot (\alpha_j^{-1})^* \vec{p}_j^*] - \frac{2}{3} k^3 |\vec{p}_j|^2 \right\}, \quad (67)$$

$$C_{sca} = \frac{k^4}{|E_{inc}|^2} \int d\Omega \left| \sum_{j=1}^N [\vec{p}_j - \hat{n}(\hat{n} \cdot \vec{p}_j)] \exp(-ik\hat{n} \cdot \vec{r}_j) \right|^2, \quad (68)$$

donde  $\hat{n}$  es un vector unitario en dirección al esparcimiento y  $d\Omega$  es un elemento de ángulo sólido.

Una implementación muy conocida del método DDA está constituida por el programa DDSCAT. Esta herramienta está escrita en el lenguaje de programación Fortran y su principal autor y desarrollador, desde 1988, es Bruce T. Draine, de la Universidad de Princeton. El programa es de acceso libre (“open-source”) y actualmente (agosto, 2014) se encuentra en la versión DDSCAT 7.3, la cual contiene 104 subrutinas, 1 fichero makefile y 1 manual. También existen otras implementaciones del dominio público como la de OpenDDA [Mc Donald *et al.* (2009)] y la de Amsterdam DDA (ADDA, por sus siglas en inglés) [Yurkin y Hoekstra (2011)], escritos en lenguaje C.

La implementación estándar del DDSCAT fue diseñada para la interacción de ondas electromagnéticas con partículas en espacio libre. Más recientemente se han incorporado herramientas para calcular el esparcimiento de partículas sobre un sustrato plano, considerando los efectos que produce la reflexión de la onda incidente en la superficie [Schmehl *et al.* (1997); Taubenblatt y Tran (1993)]. A pesar de ser herramientas implementadas en Fortran, éstas no son de acceso libre.

Inicialmente, las primeras aplicaciones del programa DDSCAT realizadas por Draine (1988) fueron para examinar propiedades ópticas de partículas esféricas y cilíndricas de grafito. Las continuas mejoras al programa han permitido realizar cálculos con una variedad de geometrías como esferoides, tetraedros, sólidos rectangulares, cilindros finitos e infinitos y

prismas hexagonales, entre otras. Las composiciones pueden ser de dieléctricos o metálicos, dándole a esta herramienta características favorables para el estudio de la plasmónica.

Dentro de la versatilidad del programa para calcular problemas de esparcimiento se encuentran estructuras periódicas (uni- o bidimensionales), y con rotaciones en tres grados de libertad. También se dispone de subrutinas que permiten visualizar los sistemas en programas gráficos de acceso libre.

En la actualidad el paquete de distribución de la versión DDSCAT 7.3 también incluye opciones para optimizar el rendimiento del programa incorporando estándares de programación en paralelo con memoria compartida (OpenMP). Estas herramientas son muy útiles para problemas de esparcimiento con arreglos grandes ( $N > 10^6$ ) y en cálculos del campo cercano, ya que proveen una ventaja significativa en los tiempos de procesamiento si se dispone de plataformas con redes de CPU's o multinúcleos.

#### 4.1. La polarizabilidad en la DDA

De importancia fundamental en el método es la selección adecuada de la polarizabilidad  $\alpha_j$ . El modelo más sencillo parte de la conocida relación de Clausius-Mossotti, la cual describe las propiedades de un material homogéneo a partir de su composición molecular dentro de una red cúbica. Con este modelo se tiene entonces que [Jackson (1962)]

$$\alpha_j^{CM} \equiv \frac{3d^3}{4\pi} \left( \frac{m_j^2 - 1}{m_j^2 + 2} \right), \quad (69)$$

donde  $d$  es la separación entre dipolos y  $m_j$  el índice de refracción complejo del material. La relación (69), también llamada de Lorentz-Lorenz, es básicamente un resultado que se obtiene en el límite cuasiestático  $k_0 d \rightarrow 0$ , y se cumple muy bien para sustancias diluidas como gases. Para líquidos y sólidos ya no se obtienen resultados confiables, especialmente si la constante dieléctrica es grande.

Inicialmente Purcell y Pennypacker (1973) utilizaron  $\alpha_j^{CM}$  como la polarizabilidad en el método DDA. Sin embargo, los resultados que se obtienen con esta aproximación no cumplen con algunos criterios básicos, como el teorema óptico para el esparcimiento por partículas. Para subsanar esta cuestión Draine (1988) mostró que fuera del límite estático, cuando  $k_0 d$

es finito, la polarizabilidad debe incluir la corrección de reacción de radiación ( $RR$ ), obteniéndose entonces la expresión

$$\alpha_j^{RR} = \frac{\alpha_j^{CM}}{1 - (2/3)i(\alpha_j^{CM}/d^3)(k_0d)^3}. \quad (70)$$

En los primeros cálculos Draine (1988) utilizó  $\alpha_j^{RR}$  como la polarizabilidad dipolar en el método DDA. Posteriormente, y con la finalidad de continuar mejorando los resultados del método, se han propuesto otro tipo de correcciones independientes de los efectos de  $RR$ , definidas como polarizabilidades no radiativas [Draine y Goodman (1993); Gutkiewicz-Krusin y Draine (2004); Collinge y Draine (2004)], quedando entonces

$$\alpha_j = \frac{\alpha_j^{nr}}{1 - (2/3)i(\alpha_j^{nr}/d^3)(k_0d)^3}, \quad (71)$$

donde  $\alpha_j^{nr}$  es la polarizabilidad no radiativa que, como veremos en la siguiente sección, constituye en sí una corrección a la polarizabilidad de Clausius-Mossotti. La incorporación de  $\alpha_j^{nr}$  en la expresión anterior tiene la finalidad de separar entre la polarizabilidad que no considera el efecto de  $RR$  ( $\alpha_j^{nr}$ ) con la que sí lo hace ( $\alpha_j$ ). A continuación se describe brevemente la corrección realizada por Draine y Goodman (1993). Esta corrección, incorporada en el método DDA, es la que se utiliza en los cálculos numéricos realizados en esta tesis.

#### 4.1.1. Polarizabilidad LDR

La primer corrección a la polarizabilidad no radiativa fue propuesta por Draine y Goodman (1993). En su derivación plantearon un problema constituido por una red cúbica infinita de puntos polarizables en la que se propagan ondas electromagnéticas planas. Buscaron la polarizabilidad dipolar de manera tal que el medio constituido por dipolos tuviera la misma relación de dispersión que en un medio homogéneo con índice de refracción complejo  $m(\omega) = \epsilon(\omega)^{1/2}$ .

De esta manera, en el límite de longitud de onda larga ( $k_0d \ll 1$ ) los autores llegaron a la siguiente expresión

$$\alpha_{LDR,j}^{nr} = \frac{\alpha_j^{CM}}{1 + (\alpha_j^{CM}/d^3) [b_1 + m^2b_2 + m^2b_3S] (k_0d)^2}, \quad (72)$$

donde  $b_1 = -1.8915316$ ,  $b_2 = 0.1648469$ ,  $b_3 = -1.7700004$  y  $S$  se define como  $S(\hat{\mathbf{a}}, \hat{\mathbf{e}}) = \sum_{j=1}^3 (a_j e_j)^2$ , donde  $\hat{\mathbf{a}}$  y  $\hat{\mathbf{e}}$  son vectores unitarios que indican la dirección de propagación y el estado de polarización de la luz incidente, respectivamente. El valor de  $S$  varia desde 0 [cuando  $\hat{\mathbf{a}} = (1, 0, 0)$ ] hasta  $\frac{1}{2}$  [cuando  $\hat{\mathbf{a}} = \frac{1}{\sqrt{2}}(1, 1, 0)$  y  $\hat{\mathbf{e}} = \frac{1}{\sqrt{2}}(1, -1, 0)$ ]. Como podemos observar en la expresión (72), la corrección incluye un término de orden  $O[(k_0 d)^2]$  que a su vez depende explícitamente del índice de refracción  $m$  y de los vectores  $\hat{\mathbf{a}}$  y  $\hat{\mathbf{e}}$ . Si además, para conservar el teorema óptico valido se aplica la corrección de  $RR$  [expresión (71)] se llega a

$$\alpha_j^{LDR} = \frac{\alpha_j^{CM}}{1 + \frac{\alpha_j^{CM}}{d^3} [(b_1 + m^2 b_2 + m^2 b_3 S) (k_0 d)^2 - \frac{2}{3} i (k_0 d)^3]}, \quad (73)$$

donde “*LDR*” es el acrónimo en inglés de la relación de dispersión de la red (“Lattice Dispersion Relation”). Así, aunque la polarizabilidad  $\alpha_j^{LDR}$  fue planteada para describir la propagación de ondas en una red cúbica infinita de un material homogéneo, se espera que ésta reproduzca fielmente la respuesta de sistemas finitos, irregulares e incluso inhomogéneos. La siguiente sección muestra la aplicabilidad y limitación de esta corrección cuando se utiliza como polarizabilidad dipolar en el método DDA.

## 4.2. Aplicabilidad y limitación de la DDA

El método DDA, en su implementación en el DDSCAT, intenta ser una herramienta versátil para el estudio de una amplia gama de problemas de la interacción de luz con partículas, como el esparcimiento por polvo interestelar, aerosoles atmosféricos, células sanguíneas, y arreglos nanoestructurados, entre otros. Sin embargo, conocer las limitaciones y la precisión en los resultados para la solución de problemas que involucren estructuras plasmónicas son de nuestro especial interés, pues se establecen los alcances del método y del programa.

En esta sección mostramos resultados numéricos utilizando la versión del programa DDSCAT 7.3 y, como polarizabilidad dipolar la expresión (73). Se consideran esferas homogéneas compuestas de oro con una función dieléctrica descrita por el ajuste lineal a los valores experimentales de Johnson y Christy (1972). Los resultados obtenidos se comparan con la solución de Mie en la implementación de Bohren y Huffman (1983). Como una forma de evaluar los resultados obtenidos con el DDA para las eficiencias de absorción y esparcimiento, definimos un parámetro que representa el error fraccional con respecto a los resultados obtenidos con

la teoría de Mie. Esto es,

$$Er = \frac{Q_{DDA}}{Q_{Mie}} - 1. \quad (74)$$

Similarmente, definimos un error en la fase que, por conveniencia, expresamos en fracciones de  $\pi$ ,

$$Er^\phi = \frac{\phi_{DDA} - \phi_{Mie}}{\pi}. \quad (75)$$

Al tratarse de un método que discretiza las partículas en términos de dipolos puntuales, es importante mostrar resultados utilizando arreglos con diferente número de dipolos  $N$ . Para cada arreglo la separación interdipolar se puede estimar de acuerdo a  $d = \sqrt[3]{\frac{4\pi}{3N}}R$ , donde  $R$  es el radio de la esfera.

Comenzamos por mostrar cálculos de  $Q_{abs}$  y  $Q_{esp}$  en función de la longitud de onda para esferas de oro con radios entre 10 y 50nm (gráficas 21a-e) representadas por arreglos de  $N = 59728$  dipolos. Esto corresponde a distancias interdipolares de entre  $d \approx 0.41\text{nm}$  y  $d \approx 2.06\text{nm}$ . También se muestran resultados de la fase de la onda esparcida (gráfica 21f).

En la figura 21 se observa que la aproximación de dipolos discretos predice muy bien el comportamiento espectral de  $Q_{abs}$  y  $Q_{esp}$  en todas estos casos. Observándose también el pico de resonancia que corresponde al plasmón localizado de superficie ( $\lambda \approx 0.50\mu\text{m}$ ). También vemos que de los tres parámetros mostrados, la  $Q_{abs}$  (líneas negras) es la que presenta mayor discrepancia con la teoría de Mie, especialmente para partículas grandes en la región del infrarrojo, como se puede apreciar en la gráfica 21e correspondiente a la esfera de 50nm.

Los errores fraccionales de  $Q_{abs}$  y  $Q_{esp}$  de los resultados anteriores se muestran en las gráficas 22a,b, respectivamente. En la misma figura, con referencia a las gráficas 22c,d, se presentan los errores fraccionales obtenidos con una discretización más fina en la que se utilizaron arreglos de  $N = 470480$  dipolos (aproximadamente 7.8 veces mayores que el primero). Con estos parámetros las distancias interdipolares se reducen aproximadamente a la mitad. Es decir que la distancia entre dipolos esta ahora entre  $d \approx 0.20$  y  $d \approx 1.03\text{nm}$ . Con objeto de visualizar en que región de la respuesta espectral de la partícula los errores son más importantes, en la gráfica 22a se superpone la  $Q_{abs}$  de la partícula con  $R = 50\text{nm}$ .

Comparando los resultados entre las gráficas 22a,c, se puede observar que ambos muestreos

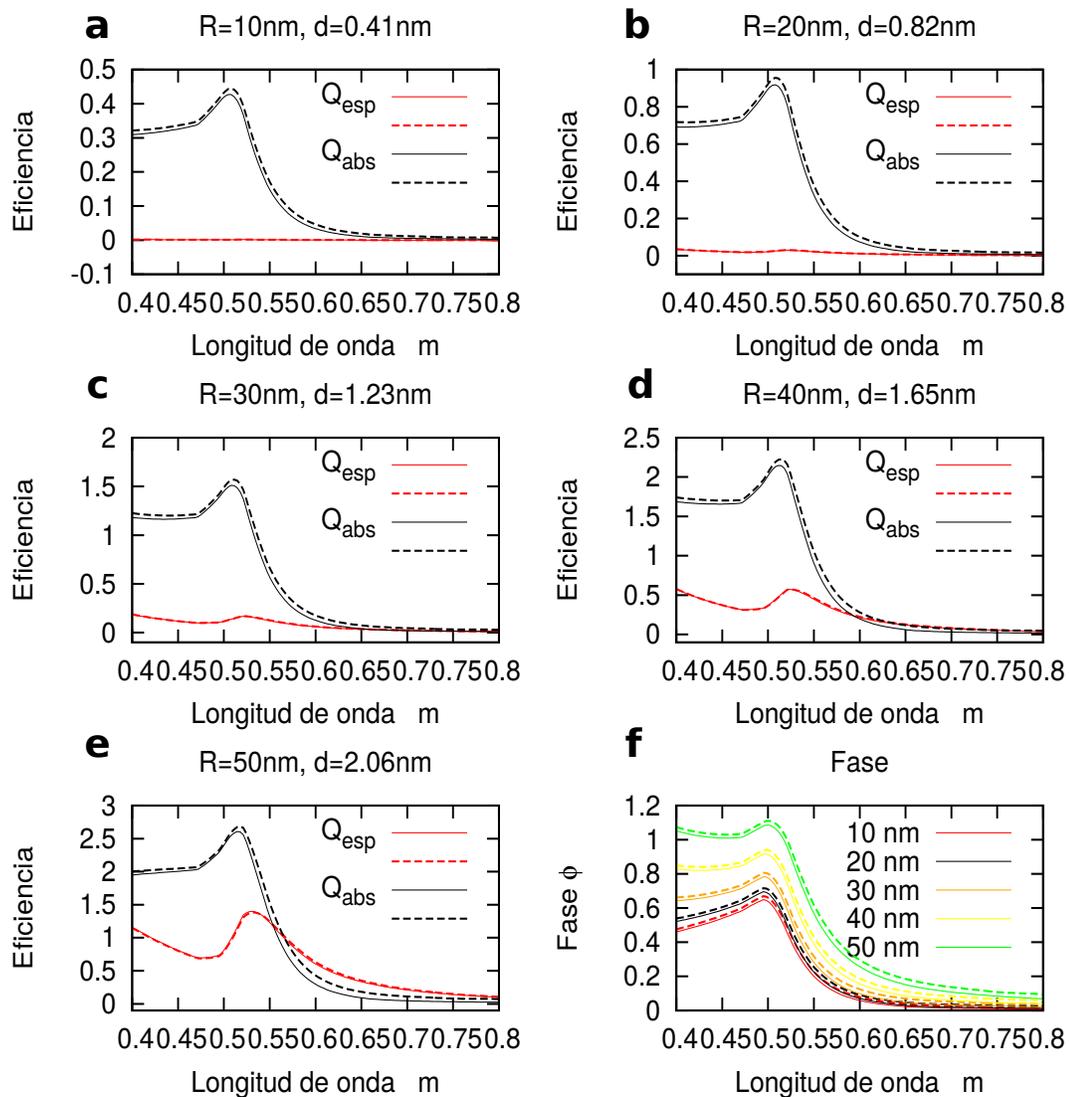
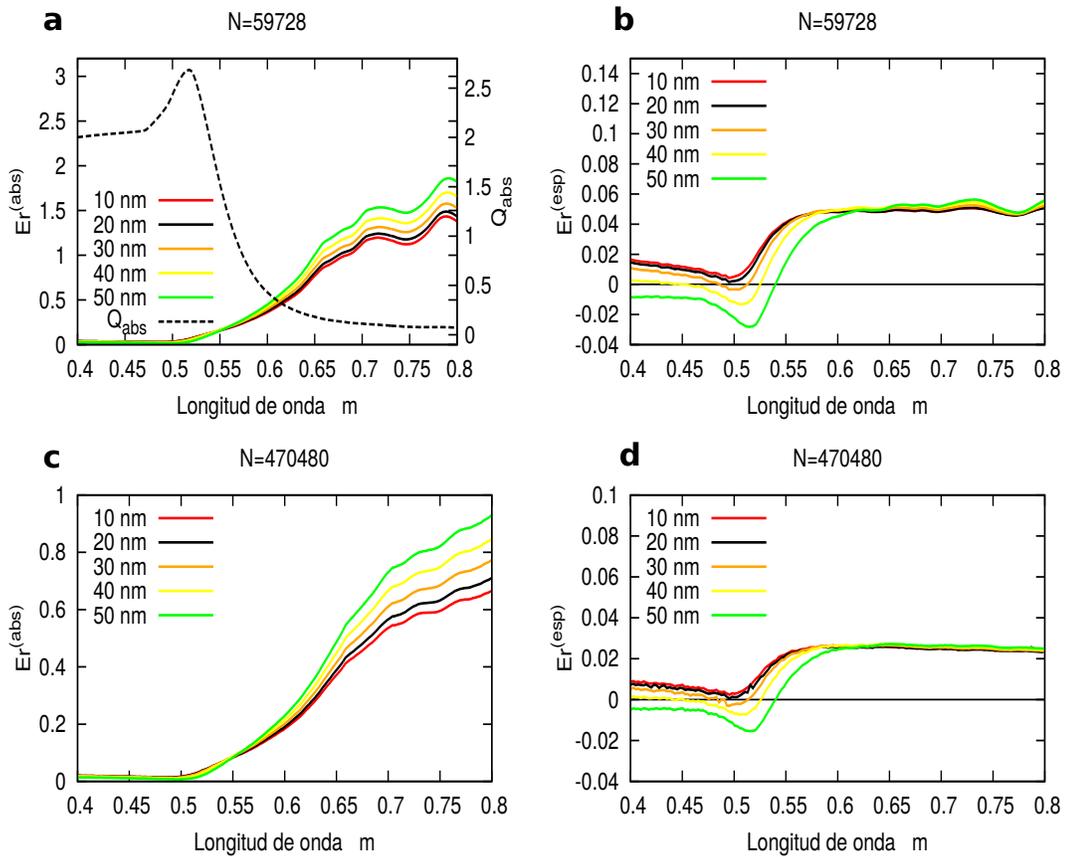


Figura 21: (a)-(e) Eficiencias de absorción y esparcimiento obtenidos con el método DDA ( $N=59728$  dipolos) y con la expansión de Mie. (f) Respuesta en fase calculada con los dos métodos (— Mie, ---- DDA).

presentan errores relativos considerables para  $Q_{abs}$  por arriba de  $\lambda = 0.550\mu\text{m}$ . Sin embargo, es necesario señalar que después de esa longitud de onda las eficiencias, tanto de  $Q_{abs}$  como  $Q_{esp}$ , son pequeñas (y más pequeñas conforme se acerca al infrarrojo), como lo ilustra la curva de  $Q_{abs}$  en la gráfica 22a. Es decir que, en el sentido práctico, hay poca absorción de luz, por lo que los errores relativos tienden a ser mayores. Por otro lado, con referencia a las gráficas 22b,d, se observa que después de  $\lambda = 0.550\mu\text{m}$ , los errores de  $Q_{esp}$  tienden a estabilizarse para ambos arreglos. Y que, la mayor precisión de  $Q_{esp}$  se alcanza alrededor de los  $\approx 0.500\mu\text{m}$ , marcando efectivamente la posición de las longitudes de onda de resonancia de las partículas esféricas.



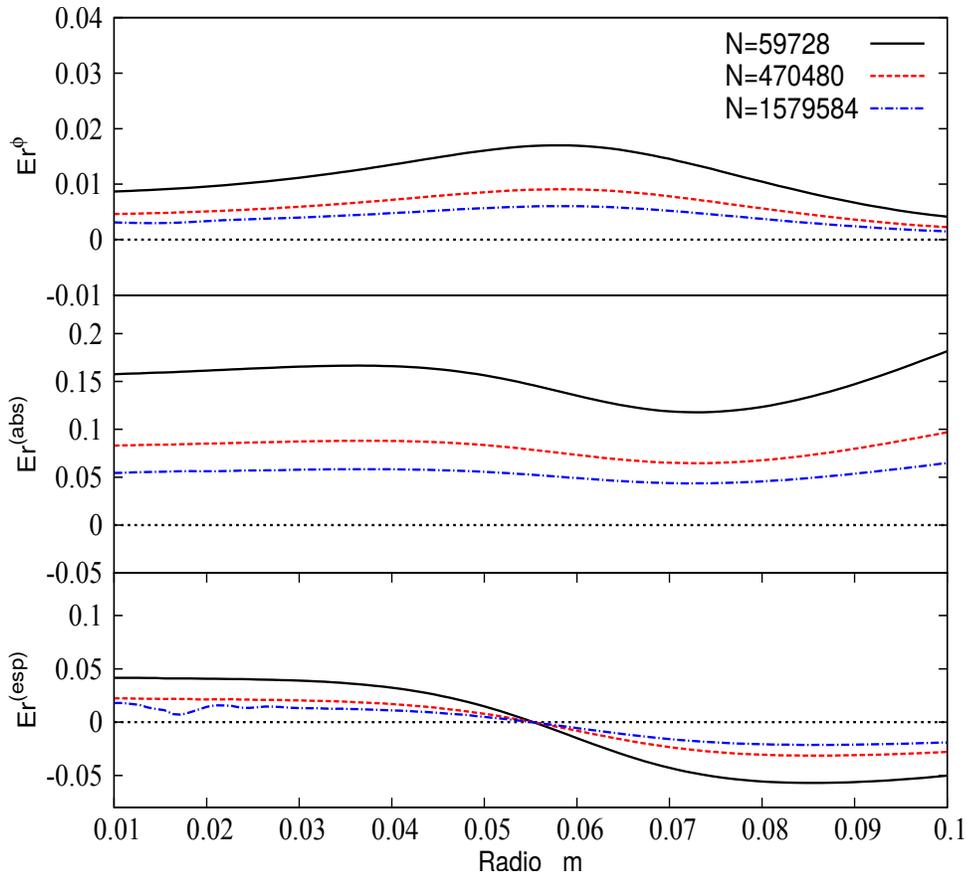
**Figura 22:** Errores relativos fraccionales de  $Q_{abs}$  y  $Q_{esp}$  utilizando  $N = 59728$  dipolos (a)-(b), y  $N = 470480$  dipolos(c)-(d).

En general, de la figura 22 vemos que al aumentar el arreglo de dipolos 7.8 veces, los errores de ambas eficiencias se reducen a la mitad, pasando de 1.8 a 0.9 en  $Q_{abs}$  (gráficas 22a,c) y de 0.04 a 0.02 en  $Q_{esp}$  (gráficas 22b,d), aproximadamente.

De los resultados anteriores es claro que el método DDA calcula con buena precisión las propiedades de esparcimiento de las partículas esféricas cerca de la región de resonancia. Fuera de ésta, en la región  $\lambda > 0.550 \mu\text{m}$ , los resultados del método sobrestiman principalmente la tasa de absorción.

Dado que la tesis se concentra en la respuesta en fase de la onda esparcida por nanopartículas, es importante mantener una precisión apropiada en los cálculos, pues de ello depende la realización de un buen diseño de las metasuperficies. La figura 23 muestra los errores fraccionales de  $Q_{esp}$ ,  $Q_{abs}$  y  $\phi$  en función del radio de esferas de oro a una longitud de onda  $\lambda_0 = 0.550 \mu\text{m}$ . Se presentan resultados utilizando los dos muestreos anteriores y un

tercero en el que  $N = 1579584$  dipolos. Es decir que es 3.3 veces mayor que el segundo y 26 veces mayor que el arreglo inicial. En este caso la separación interdipolar está entre  $d \approx 0.13$  y  $d \approx 0.69\text{nm}$ .

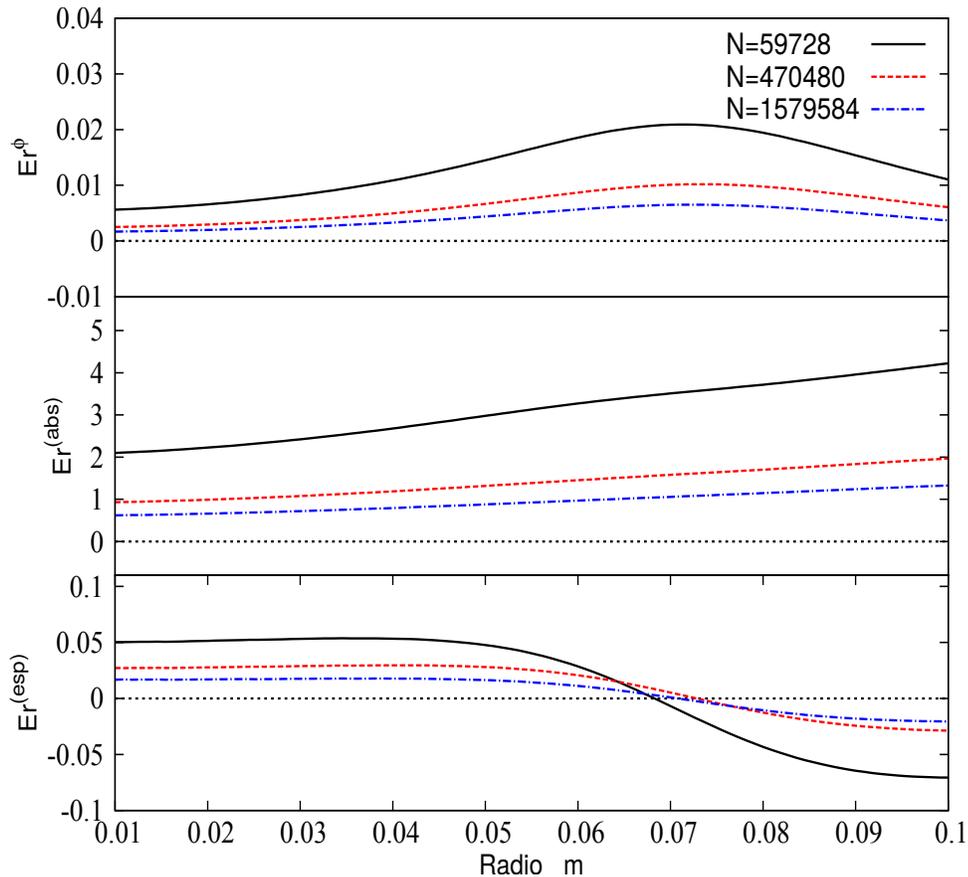


**Figura 23:** Errores relativos fraccionales de fase ( $Er^\phi$ ), eficiencia de absorción ( $Er^{abs}$ ) y esparcimiento ( $Er^{esp}$ ) en función del radio de esferas de oro para tres diferentes arreglos de dipolos:  $N = 59728$ ,  $N = 470480$  y  $N = 1579584$  dipolos.

En la figura 23 se puede observar que, si bien el segundo arreglo ( $N = 470480$ ) disminuye aproximadamente un 50% los errores en fase y eficiencias, el tercer arreglo lo hace en menor proporción, a pesar de contar con 26 veces más dipolo que el inicial. Es decir que con arreglos muy grandes ( $N \sim 10^6$ ) la reducción de los errores ya no es tan importante y, debido al muestreo tan fino, se presentan inconvenientes en el aumento de los recursos computacionales y consecuentemente en el tiempo de procesamiento.

Si ahora cambiamos el material de las partículas y consideramos esferas de plata con una función dieléctrica tomada de un ajuste lineal a Johnson y Christy (1972). En la figura 24

se muestran los errores fraccionales  $Q_{esp}$ ,  $Q_{abs}$  y  $\phi$  en función del radio de esferas de plata a una longitud de onda  $\lambda_0 = 0.550\mu\text{m}$  utilizando los tres muestreos anteriores.



**Figura 24:** Errores relativos fraccionales de fase ( $Er^\phi$ ), eficiencia de absorción ( $Er^{abs}$ ) y esparcimiento ( $Er^{esp}$ ) en función del radio de esferas de plata para tres diferentes arreglos de dipolos:  $N = 59728$ ,  $N = 470480$  y  $N = 1579584$  dipolos.

En la figura 24 vemos que de igual manera el segundo arreglo disminuye aproximadamente un 50 % los errores fraccionales mientras que el tercero lo hace en una proporción menor. Sin embargo, cotejando los errores de  $Er^{abs}$  entre las esferas de oro y plata (figuras 23 y 24), es claro observar que estos errores son mucho mayores en las esferas de plata. Los resultados en los demás parámetros  $Er^\phi$  y  $Er^{esp}$  son similares en los dos materiales.

Es curioso observar como el método DDA sobrestima en mucho mayor grado la  $Q_{abs}$  con las esferas de plata, a pesar de que la respuesta macroscópica de la plata, como elemento continuo, tenga menor absorción [ $\epsilon_2(\omega)$ ] que la del oro (ver figuras 1b,d), especialmente alrededor de los 550nm.

Cabe resaltar que de los parámetros que comparamos con teoría de Mie, la respuesta en fase resultó ser la más precisa para ambos materiales, indicando que aún con arreglos de  $N \sim 10^4$  dipolos, que corresponden a distancias interdipolares de entre  $d \approx 0.74$  y  $\approx 3.74\text{nm}$ , se pueden esperar buenos resultados. Los arreglos utilizados en esta tesis varían según el problema, pero en general fueron del orden de  $N \sim 10^5$  ( $d \approx 0.2\text{nm}$ ) Esta discretización se consideró adecuada para los cálculos que presentamos aquí, pero es claro que para sistemas con geometrías más complejas o tamaños mayores, el incremento en las dimensiones del arreglo es ineludible.

## Capítulo 5. Respuesta en fase de nanoantenas

---

En este capítulo se presentan los resultados más significativos que encontramos en el desarrollo de esta tesis, pues conocer y controlar la fase de la onda esparcida por nanopartículas (nanoantenas) nos permitirá diseñar metasuperficies que operen en la región visible del espectro electromagnético.

La estrategia que seguimos comenzó por abordar el problema analíticamente. Utilizando partículas esféricas y esferoidales, se presentan resultados en los cambios de fase y las eficiencias de esparcimiento dentro de la aproximación cuasiestática. El uso de resultados analíticos facilita explorar el origen y la dependencia de la fase con parámetros como el radio de la esfera o la relación de aspecto de los esferoides.

Posteriormente, empleando el método de la aproximación de dipolos discretos (DDA, por sus siglas en inglés), se muestran y analizan los cambios de fase que producen nanopartículas cilíndricas con terminaciones semiesféricas (nanobarras). Explorando principalmente la dependencia de la fase a variaciones en la relación de aspecto y la rotación de las nanobarras en el plano perpendicular a la dirección de la luz incidente. Dentro del estudio se ilustran con gráficas espectrales los cambios de fase que consiguen independientemente las componentes del campo esparcido en dirección paralela y ortogonal respecto a la polarización lineal incidente. Culmina esta sección presentando la técnica de nanoantenas espejo y los efectos que se logran principalmente en la componente ortogonal (polarización cruzada) del campo esparcido.

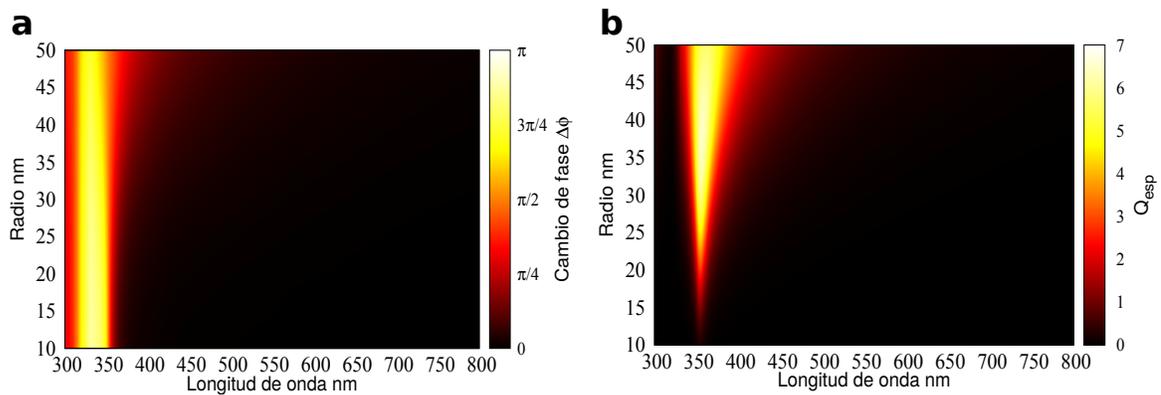
En la última sección se presenta el diseño de una metasuperficie compuesta por un arreglo de ocho nanobarras y que opere a una longitud de onda  $\lambda_0 = 633\text{nm}$ . Para evaluar el desempeño de la metasuperficie, ésta se modela con en el principio de Huygens-Fresnel donde cada nanoantena actúa como una fuente dipolar puntual donde emergen ondas secundarias con una amplitud y una fase calculadas rigurosamente con el método DDA.

### 5.1. Esferas y esferoides

En esta sección presentamos resultados de fase y eficiencia de esparcimiento en función de la longitud de onda para esferas y esferoides dentro de la aproximación cuasiestática

( $x \ll 1$ , donde  $x$  es el parámetro de tamaño de la partícula). En el caso esférico, el tamaño de parámetro es de la forma  $x = kR$ , donde  $R$  es el radio de la esfera. Mientras en los esferoides es  $x = kc$ , donde  $c$  es el semieje mayor. En ambos casos se consideraron partículas homogéneas de plata con constantes ópticas tomadas de un ajuste lineal a los valores experimentales de Johnson y Christy (1972). Los modelos de polarizabilidad se tomaron de acuerdo a las expresiones (57) y (58) para esferas y esferoides, respectivamente.

En la figura 25 se muestra, como un mapa de intensidad, la fase y la eficiencia de esparcimiento para esferas de radios de entre 10 y 50nm. De la figura 25a se puede observar que la fase cambia entre 0 y un valor cercano a  $\pi$  al pasar por la resonancia del plasmón localizado de superficie (LSPR), en  $\lambda \approx 340$ nm. Vemos también que este cambio abrupto tiende a suavizarse conforme el radio de la esfera se incrementa. De lo anterior se puede inferir que, para una longitud de onda un poco por arriba de la LSPR, es posible controlar la respuesta en fase dentro de este intervalo modificando el tamaño de la esfera.



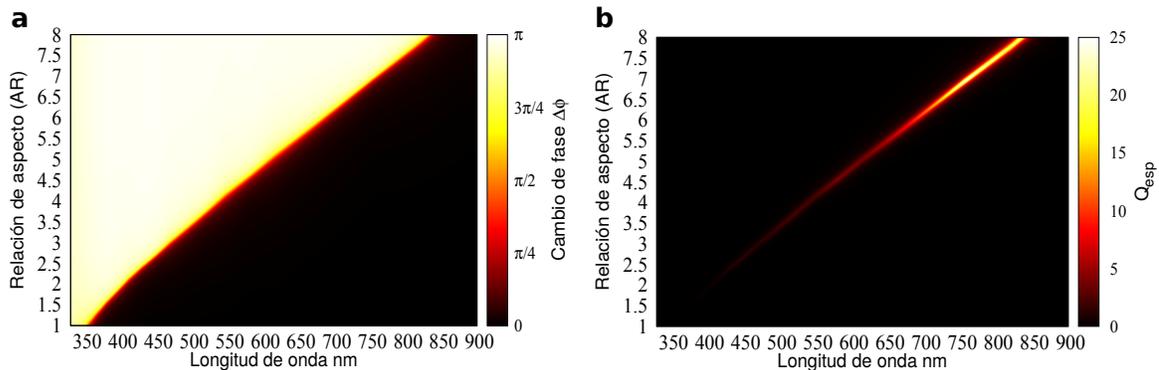
**Figura 25:** (a) Cambios de fase y (b) eficiencia de esparcimiento en función de la longitud de onda para esferas de plata de varios radios.

Para la construcción de una metasuperficie es deseable que, además de tener el control de fase completo, las nanoantenas involucradas tengan una eficiencia de esparcimiento similar. Sin embargo, los resultados de la figura 25b muestran que la  $Q_{esp}$  aumenta con el radio. Estos efectos son característicos en partículas pequeñas en comparación con la longitud de onda, pues la eficiencia de esparcimiento es proporcional a  $\sim x^4$  (esparcimiento de Rayleigh).

Por lo anterior, es claro que con esferas es difícil controlar ambos parámetros (amplitud y fase) simultáneamente. Asimismo, los cambios de fase están limitados al intervalo  $[0$  a  $\pi]$

y, debido a la simetría de la esfera, no es posible emplear técnicas como rotación o detección de la polarización ortogonal para ayudar a solventar esta limitación. Una alternativa es la exploración de geometrías como esferoides prolatos que se caracterizan por tener dos semiejes de igual tamaño y menores al tercero ( $a = b < c$ ). Comúnmente, para indicar las dimensiones relativas entre lo largo y ancho de esta geometría se utiliza  $AR$ , de acuerdo a  $AR = \frac{c}{a}$ .

En la figura 26 se muestra un mapa de intensidad con los resultados correspondientes a esferoides prolatos de plata con un diámetro fijo de  $2a = 10\text{nm}$  e incrementos en la longitud  $c$ .



**Figura 26:** (a) Cambios de fase y (b) eficiencia de esparcimiento espectrales en esferoides prolatos de plata con diferente relación de aspecto ( $AR$ , por sus siglas en inglés).

Los esferoides prolatos también responden con cambios de fase abruptos de 0 a  $\pi$ , sin embargo, a diferencia de las esferas, estas transiciones se desplazan hacia el infrarrojo como se observa en la figura 26a. Una observación importante, que resulta del análisis de estos resultados, es que, en principio, dentro del intervalo de frecuencias ópticas, es posible alcanzar cualquier valor de fase de entre 0 a  $\pi$  utilizando esferoides prolatos y variando la relación de aspecto entre 2 y 7.

En la figura 26b se observa que al aumentar  $AR$ , la LSPR tiene un corrimiento hacia frecuencias más bajas acompañado con el incremento considerable de  $Q_{esp}$ . Estas características se pueden explicar cuantitativamente observando la polarizabilidad cuasiestática del esferoide y su dependencia con el factor geométrico  $L_3$ , dados por las expresiones (47) y (48), respectivamente. Inspeccionando estas expresiones observamos que al incrementar  $AR$ , y si se cumple que  $c \gg a$ , el parámetro  $L_3$  disminuye. Esta situación tiene dos consecuencias principales:

- La condición de resonancia del esferoide, que ocurre cuando  $\epsilon_{el}(\omega) \approx 1 - \frac{1}{L_i}$ , se cumple a longitudes de onda más largas, en las que  $\Re\{\epsilon_{el}(\omega)\}$  es de magnitud mayor pero con signo negativo (figura 1c).
- La polarizabilidad cuasiestática (47) se incrementa tanto por el valor del semieje  $c$ , como por el hecho de que es inversamente proporcional a  $L_\beta$ , provocando que la amplitud del campo esparcido aumente.

Con los resultados presentados en esta sección vimos que, si bien las esferas pueden controlar el intervalo de fase entre  $[0$  y  $\pi]$ , únicamente lo hacen en una región cercana a la LSPR, con el inconveniente en el aumento considerable de la  $Q_{esp}$ . Por otra parte, los esferoides prolatos presentan ventajas mayores al cubrir un rango espectral amplio, sin embargo, las transiciones abruptas de fase permanecen en todo el rango de frecuencias ópticas. La limitación principal de estas nanoantenas es que no responden a cambios mayores a  $\pi$ , por lo que es necesario buscar otro tipo de partículas o técnicas que nos permitan alcanzar el rango completo de fase y, si es posible, controlar la amplitud.

## 5.2. Cilindros con terminaciones semiesféricas

Una de las geometrías más estudiadas como nanoantena óptica ha sido el cilindro alargado con terminaciones semiesféricas (comúnmente llamado nanobarilla o nanorod). Se trata de una de las nanoestructuras que más se aproxima a una antena dipolar de RF y ha sido utilizada en diferentes campos de la nanofotónica.

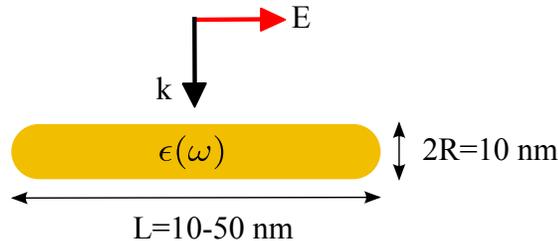
Para este caso ya no se conocen resultados analíticos, por lo que es necesario proceder por medio de cálculos numéricos que en nuestro caso fueron realizados con el método DDA, utilizando el programa DDSCAT.

La versión actual del DDSCAT no da, de manera directa, resultados de la respuesta en fase de las nanopartículas estudiadas. Parte del trabajo de tesis que aquí se presenta consistió en modificar el código fuente para obtener la respuesta en fase de una partícula arbitraria a partir de su matriz de amplitud de esparcimiento [expresión (11)]. Con estas modificaciones fue posible calcular la fase del campo radiado utilizando el programa DDSCAT. Las modificaciones realizadas al código fuente se validaron a través de comparaciones con la solución

de Mie para la esfera en la implementación de Bohren y Huffman (1983).

### 5.2.1. Dependencia con AR

En esta subsección se presentan cálculos espectrales del esparcimiento por nanobarras de oro de 10nm de diámetro en los que variamos la relación de aspecto ( $AR = \frac{L}{2R}$ ) entre sus dimensiones. La geometría y la dirección de iluminación consideradas se ilustran en la figura 27.

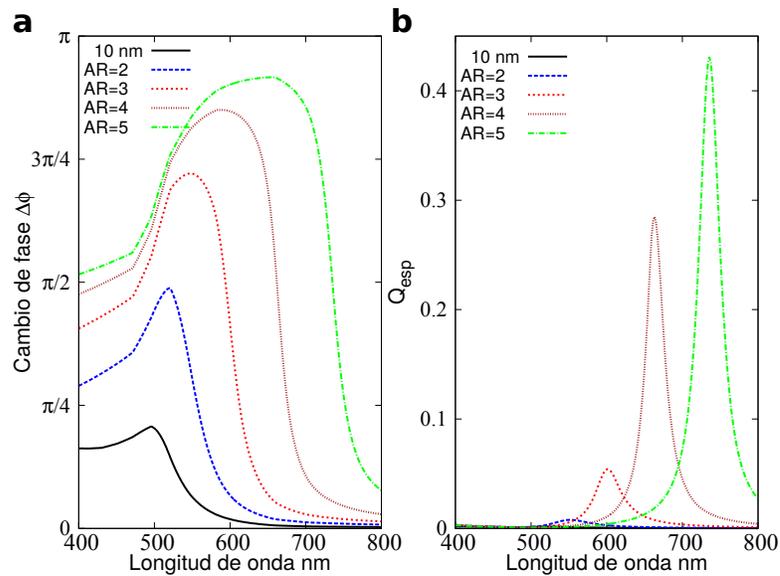


**Figura 27: Diagrama de un cilindro con terminaciones semiesféricas de oro con incrementos longitudinales.**

Los resultados numéricos de fase y eficiencia de esparcimiento para estas nanobarras se muestran en las figuras 28a y 28b, respectivamente. Con referencia a la figura 28a, vemos que la fase aumenta al aumentar  $AR$ , hasta llegar a un valor máximo de  $\sim \pi$  para la nanobarra con  $AR = 5$ . Al comparar estos resultados con lo obtenidos con esferoides prolato, notamos que los cambios de fase abruptos que veíamos al pasar por la LSPR, se han convertido en cambios de fase más suaves y graduales para las nanobarras. Esta es una característica atractiva para el diseño de las metasuperficies, pues permite tener un mejor control sobre la respuesta en fase.

En la figura 28b vemos que la  $Q_{esp}$  también aumenta al aumentar  $AR$ . Si bien esta característica es parecida a la encontrada con los esferoides prolato, podemos ver que las  $Q_{esp}$  de las nanobarras no varían tan radicalmente como los esferoides prolato al incrementar  $AR$  (figura 26b). En la misma figura 28b, observamos que la LSPR se corre hacia el infrarrojo conforme  $AR$  aumenta y que, para abarcar el rango de longitudes de onda de la luz visible, es suficiente considerar cilindros con una razón de aspecto de hasta 5 a 1.

De los resultados obtenidos anteriormente, encontramos que con las nanobarras podemos controlar de mejor manera las transiciones de fase dentro de la región visible del espectro,



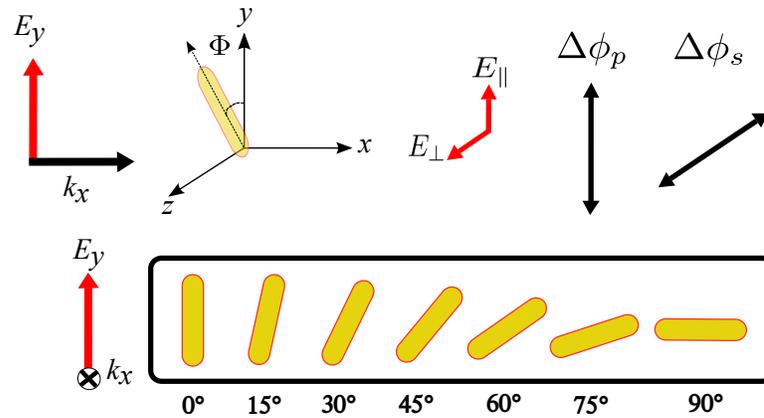
**Figura 28:** (a) Cambio de fase y (b) eficiencia de esparcimiento en nanobarras de oro con diferente  $AR$ .

logrando alcanzar fases intermedias entre 0 y  $\pi$  simplemente cambiando la  $AR$ . Sin embargo, esta técnica sólo resuelve la mitad de los requerimientos de una metasuperficie, pues necesitamos cubrir el intervalo completo  $(0, 2\pi)$ . Con la finalidad de conseguir cambios de fase mayores, exploramos ahora la respuesta en fase de nanobarras como función de su orientación.

### 5.2.2. Dependencia con la rotación

La situación física considerada en esta subsección se ilustra en la figura 29. La rotación de la nanobarra se realiza en el plano  $y - z$  que es perpendicular a la dirección de la luz incidente como se ilustra en la figura 29. Definimos como  $\Phi$  ( $0^\circ \leq \Phi \leq 90^\circ$ ) el ángulo que forman la dirección del campo eléctrico incidente ( $E_y$ ) y el eje de simetría de la nanobarra. Presentamos cálculos de fase y esparcimiento para nanobarras de oro rotadas cada  $15^\circ$ .

En general, dependiendo de la orientación de la nanobarra en relación con la dirección de polarización, se pueden excitar dos resonancias plasmónicas; una longitudinal, a lo largo del eje de la nanobarilla, y la otra transversal. En ambos casos, la nanobarra esparce luz con patrones dipolares, pero rotados por  $90^\circ$  entre ellos. La interferencia de los campos radiados por estas dos excitaciones produce un estado de polarización elíptico en general. En el campo lejano, el campo eléctrico esparcido se puede dividir en su componente paralela ( $E_{\parallel}$ ) y ortogonal ( $E_{\perp}$ ) a la dirección de la polarización lineal incidente. Denotamos por  $\Delta\phi_p$



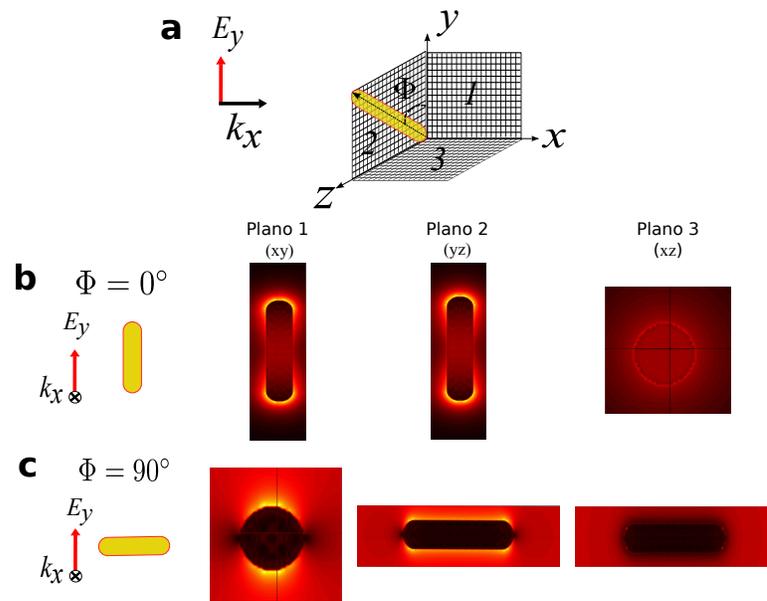
**Figura 29:** Ilustración de la rotación de una nanobarra de oro para un ángulo  $\Phi$  medido a partir del eje  $y$ , iluminada con luz linealmente polarizada a lo largo del eje  $y$ . Se calcula la fase tanto para la componente de polarización paralela ( $\Delta\phi_p$ ) como la ortogonal ( $\Delta\phi_s$ ) a la dirección de la polarización lineal incidente  $E_y$ .

al cambio de fase de  $E_{||}$  y por  $\Delta\phi_s$  al de  $E_{\perp}$ , como se ilustra en la figura 29.

En la figura 30a se muestra el diagrama esquemático que ilustra la excitación de los modos resonantes longitudinal y transversal, así como los planos ( $xy$ ,  $yz$  y  $xz$ ) en los que se calcula el campo cercano de una nanobarra con  $AR = 5$ . En las figuras 30b,c presentamos resultados de intensidad del campo cercano para los tres planos. En las mismas figuras (30b,c) observamos que el movimiento de las cargas libres en la nanobarra, provocado por la fuerza oscilatoria del campo eléctrico incidente  $E_y$ , resulta en una intensificación del campo en los extremos de la nanobarra (figura 30b), o en las caras laterales (figura 30c), según se excite al modo longitudinal o al transversal, respectivamente.

Para excitaciones que no están a lo largo de los ejes de simetría ( $\Phi \neq 0^\circ, 90^\circ$ ), la fase y amplitud del campo esparcido están fuertemente determinados por las fases introducidas como resultado de la excitación de las dos resonancias plasmónicas y por la eficiencia de la excitación de cada modo. Iniciamos mostrando en la figura 31 los cambios de fase  $\Delta\phi_p$  y las eficiencias de esparcimiento correspondiente al campo paralelo que se obtienen con una nanobarra de  $AR = 5$ , rotada en intervalos de  $15^\circ$ . Se escogió la nanobarra más larga por la mayor variación en fase que presenta ( $\sim \pi$ ) y por que las rotaciones nos permiten buscar fases intermedias y acercarnos a las características deseadas.

Con referencia en la figura 31a observamos que los cambios en fase del campo  $E_{||}$  cubren un amplio intervalo entre 0 y un valor cercano a  $\pi$  para diferentes ángulos de rotación, similar



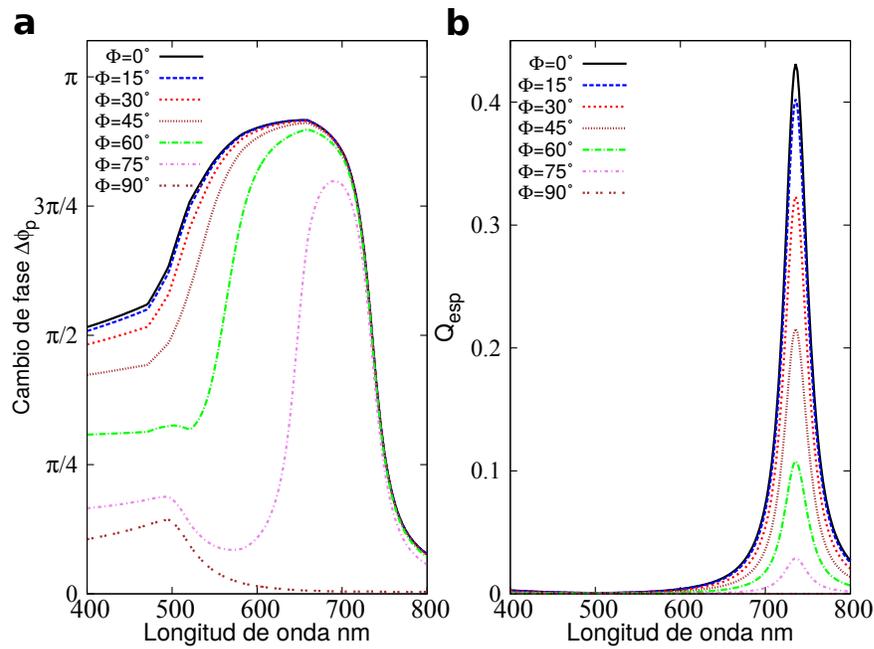
**Figura 30:** (a) Diagrama que ilustra la geometría y los planos en los que se calcula el campo cercano. Intensidad del campo cercano para la excitación del modo (b) longitudinal y (c) transversal.

a lo encontrado con incrementos en la  $AR$ . Sin embargo, los cambios de fase como función de la rotación se mantienen constantes para ángulos menores de  $45^\circ$ , en las longitudes de onda por debajo de la LSPR. Para ángulos mayores, estos cambios disminuyen significativamente, abarcando casi por completo el intervalo de  $0$  a  $\pi$ . En la figura 31b vemos que la rotación de la nanobarra no altera la posición de la resonancia, solamente merma la amplitud de la  $Q_{esp}$ , llegando prácticamente a desaparecer para un ángulo de  $90^\circ$ .

La característica de mantener la fase constante para  $\Phi \lesssim 45^\circ$ , sumada al decremento de la  $Q_{esp}$  dentro del mismo intervalo, aportan una flexibilidad interesante para el diseño de las metasuperficies, pues permite utilizar cilindros de distintas dimensiones y ángulos de rotación para empatar las eficiencias de esparcimiento. La suavidad y el control en la modulación de fase que se logra utilizando estas nanobarras rotadas también resuelven parte de los requerimientos para generar un gradiente de fase adecuado para una metasuperficie.

### 5.2.3. Polarización cruzada

Los resultados de los cambios de fase  $\Delta\phi_s$  del campo perpendicular a la polarización de incidencia que produce la misma nanoantena con un  $AR = 5$  y rotaciones cada  $15^\circ$  se muestran en la figura 32a.



**Figura 31:** (a) Fase del campo paralelo a la dirección de polarización de incidencia y (b) eficiencia de esparcimiento para diferentes ángulos de rotación de una nanobarras de oro con  $AR = 5$ .

También se presentan, en la figura 32b, los cambios de fase  $\Delta\phi_s$  que generan nanobarras de diferentes  $AR$ , pero con un ángulo fijo de  $\Phi = 45^\circ$ . Como se puede observar en la figura 32a, la fase del campo  $E_\perp$  no es sensible a la orientación de la nanoantena y depende únicamente de su relación de aspecto (figura 32b). Una diferencia con los resultados de fase del campo  $E_\parallel$ , es que la modulación de fase se logra con longitudes de onda por arriba de la LSPR, una característica relacionada directamente con la longitud de la nanobarra y el corrimiento de su resonancia al infrarrojo.

Con los diferentes resultados mostrados en esta subsección se observó que la técnica de rotación (en el intervalo  $0^\circ \leq \Phi \leq 90^\circ$ ), permite modular la fase en el rango de 0 a  $\pi$  para ambos casos de polarización. Sin embargo, todavía no se han alcanzado desfases en el intervalo complementario (de  $\pi$  a  $2\pi$  ó de  $-\pi$  a 0). Con la finalidad de alcanzar ese intervalo, a continuación se presentan resultados numéricos utilizando rotaciones mayores a  $90^\circ$ , técnica conocida como nanoantenas espejo.

#### 5.2.4. Nanoantenas espejo

El concepto de nanoantena espejo se ilustra en la figura 33. Esta técnica consiste en rotar una nanobarra que hace un ángulo  $\Phi$  con la polarización del haz incidente por un ángulo de

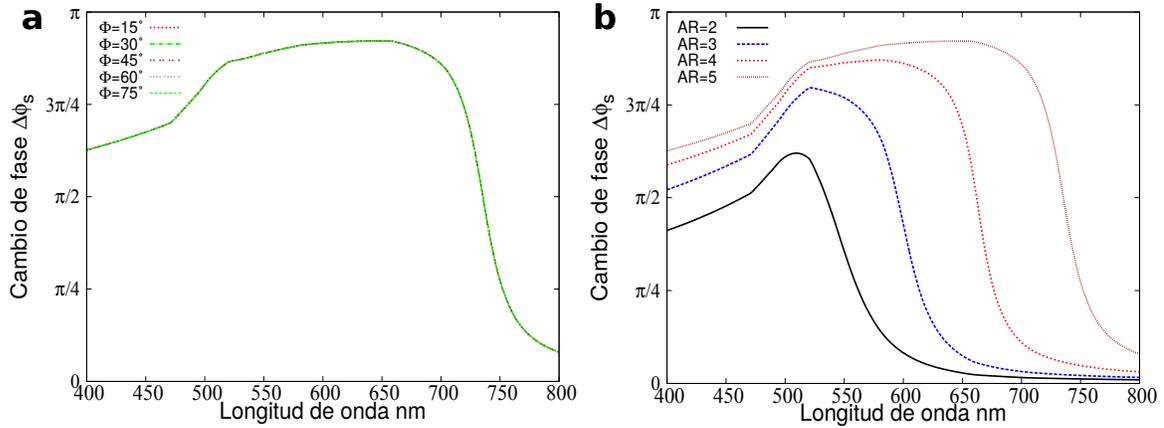


Figura 32: Fase del campo perpendicular a la dirección de polarización de incidencia para (a) diferentes ángulos de rotación y (b) diferentes relaciones de aspecto.

$90^\circ$ . La situación se muestra en los primeros esquemas de las figuras 33a,b.

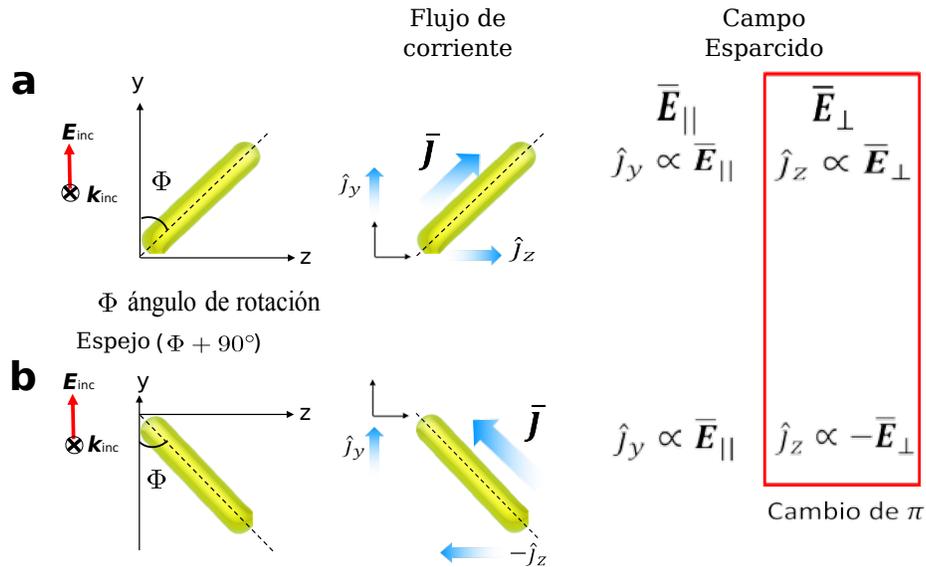


Figura 33: Representación gráfica de (a) nanoantena rotada, (b) nanoantena espejo.

La figura 33a muestra una nanobarra rotada un ángulo  $\Phi$  respecto a  $y$ . A la derecha se ilustra la dirección del flujo de corriente ( $\vec{J}$ ) con el que es excitado el modo longitudinal y la descomposición de éste en  $\hat{J}_y$  y  $\hat{J}_z$ . Las amplitudes de los campos esparcidos  $E_{||}$  como  $E_{\perp}$  son proporcionales y siguen la dirección de estas corrientes. La figura 33b ilustra la nanoantena espejo correspondiente a la figura 33a.

De las figuras 33a y 33b vemos que, las componentes  $\vec{J}_z$  tienen sentidos opuestos en estos

dos casos, ocasionando que los campos esparcidos perpendicularmente  $E_{\perp}$  se encuentren desfasados exactamente por un factor de  $\pi$ . En esta misma figura observamos que esto no ocurre para los campos  $E_{\parallel}$ , que están en fase.

De esta manera, utilizando nanoantenas espejo y detectando el campo perpendicular, es posible alcanzar valores en el intervalo de  $-\pi$  a 0. La figura 34 muestra los cambios de fase  $\Delta\phi_s$  asociados a nanobarras espejo con diferentes  $AR$  y orientadas a un ángulo fijo de  $\Phi = 45^\circ$ . Como se puede ver, con nanoantenas espejo es posible cubrir casi por completo el rango de  $-\pi$  a 0 que buscábamos.

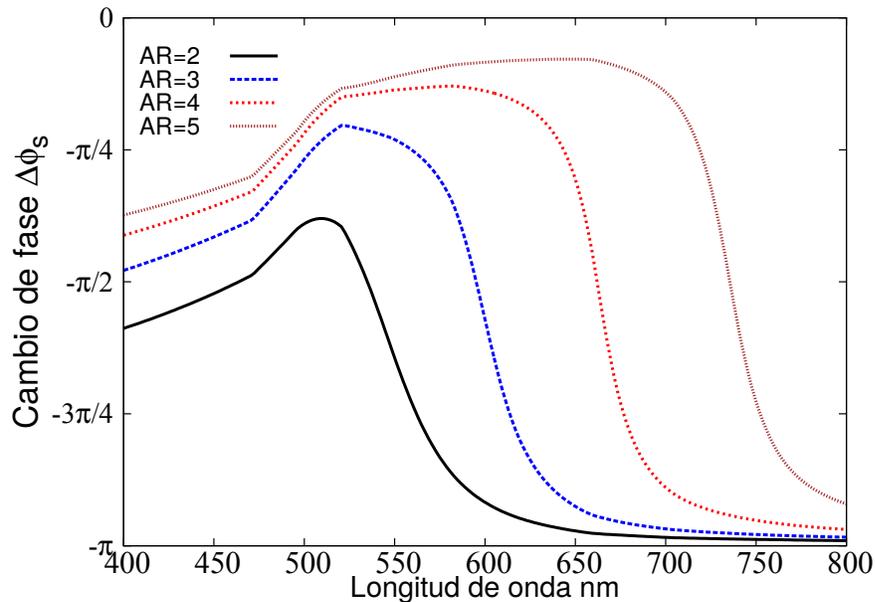
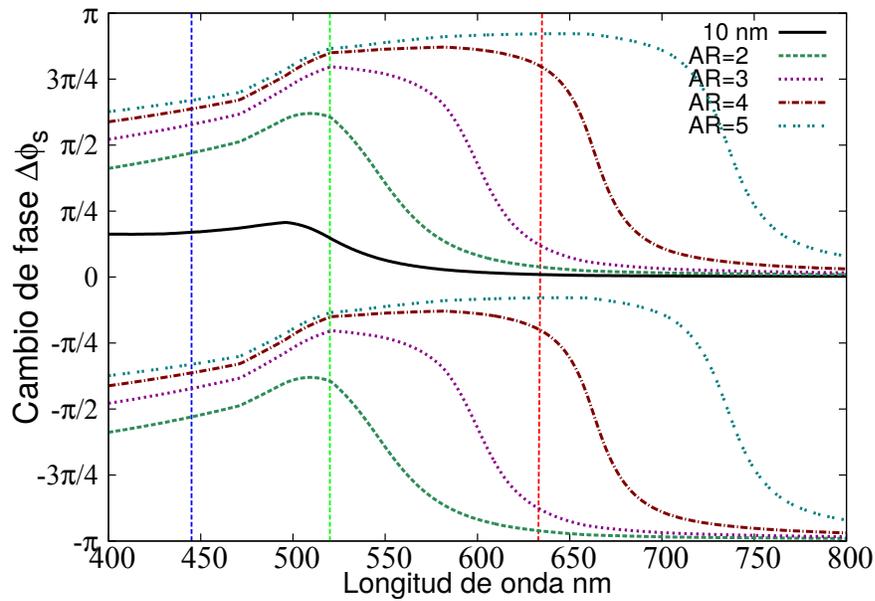


Figura 34: Cambios de fase  $\Delta\phi_s$  con nanobarras espejo de diferentes tamaños.

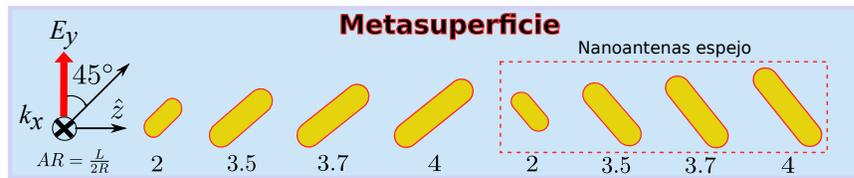
### 5.3. Diseño de una metasuperficie

Con los resultados anteriores se tienen los elementos necesarios para diseñar metasuperficies que operen en la región visible del espectro electromagnético. La figura 35 combina los resultados de las nanoantenas rotadas con sus correspondientes nanoantenas espejo en donde se indican longitudes de onda que corresponden al azul ( $\lambda_0 \approx 445\text{nm}$ ), verde ( $\lambda_0 \approx 520\text{nm}$ ) y rojo ( $\lambda_0 \approx 633\text{nm}$ ). De esta figura se ve que, por las propiedades ópticas del metal, es apropiado diseñar metasuperficies para longitudes de onda más larga, ya que los cambios de fase están mejor distribuidos dentro del intervalo de  $-\pi$  a  $\pi$ .



**Figura 35:** Cambios de fase del campo ortogonal utilizando nanobarras rotadas con sus correspondientes espejo. Se remarcan las líneas de emisión del azul ( $\lambda_0 \approx 445\text{nm}$ ), verde ( $\lambda_0 \approx 520\text{nm}$ ) y rojo ( $\lambda_0 \approx 633\text{nm}$ ).

En la figura 36 se propone el diseño de una metasuperficie que funcione como un gradiente de fase lineal (GFL) para una longitud de onda  $\lambda_0 \approx 633\text{nm}$  (rojo). El GFL está compuesto por ocho nanobarras con una orientación fija a  $45^\circ$  (antenas rotadas) y  $135^\circ$  (antenas espejo) con respecto a la dirección de la polarización lineal incidente ( $E_y$ ). Por el número de elementos en el diseño la diferencia de fase entre nanoantenas vecinas será de  $\Delta\phi = \frac{\pi}{4}$ .



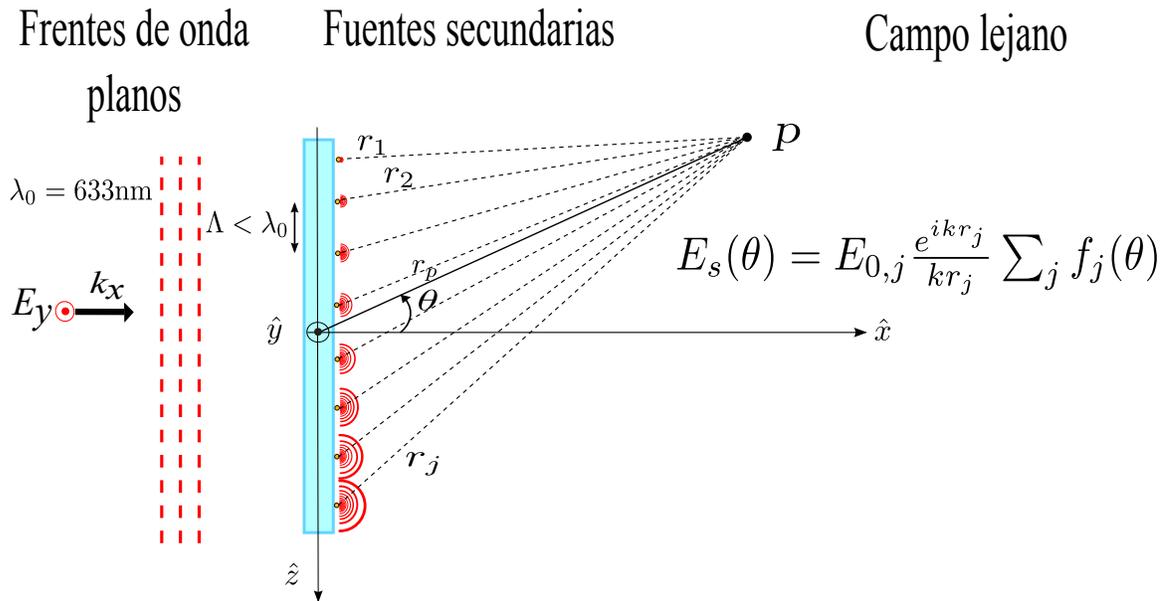
**Figura 36:** Diseño de un gradiente de fase lineal (GFL) para operación a una longitud de onda  $\lambda_0 \approx 633\text{nm}$

### 5.3.1. Metasuperficies de Huygens-Fresnel

Una vez escogidos los elementos con los que se construirá la metasuperficie, es conveniente pasar a un modelo más sencillo que nos permita evaluar el campo esparcido por el arreglo de nanoantenas. Para esto, empleamos un modelo basado en el principio de Huygens-Fresnel.

A finales del siglo XVII, el físico holandés Christiaan Huygens propuso un modelo para

explicar la propagación de la luz. En este modelo, cada punto que conforma un frente de onda actúa como una fuente secundaria de ondas esféricas. A un tiempo posterior, el nuevo frente de onda será formado por la envolvente de estas ondas secundarias [Huygens (1690)]. Este principio fue complementado casi siglo y medio después por Augustin-Jean Fresnel quien tomó en cuenta los efectos de interferencia entre esas ondas secundarias, lo que le permitió explicar varios fenómenos de difracción. Tomando este punto de vista para nuestra metasuperficie, cada nanoantena puede considerarse como una fuente puntual (o un dipolo puntual) de ondas esparcidas.

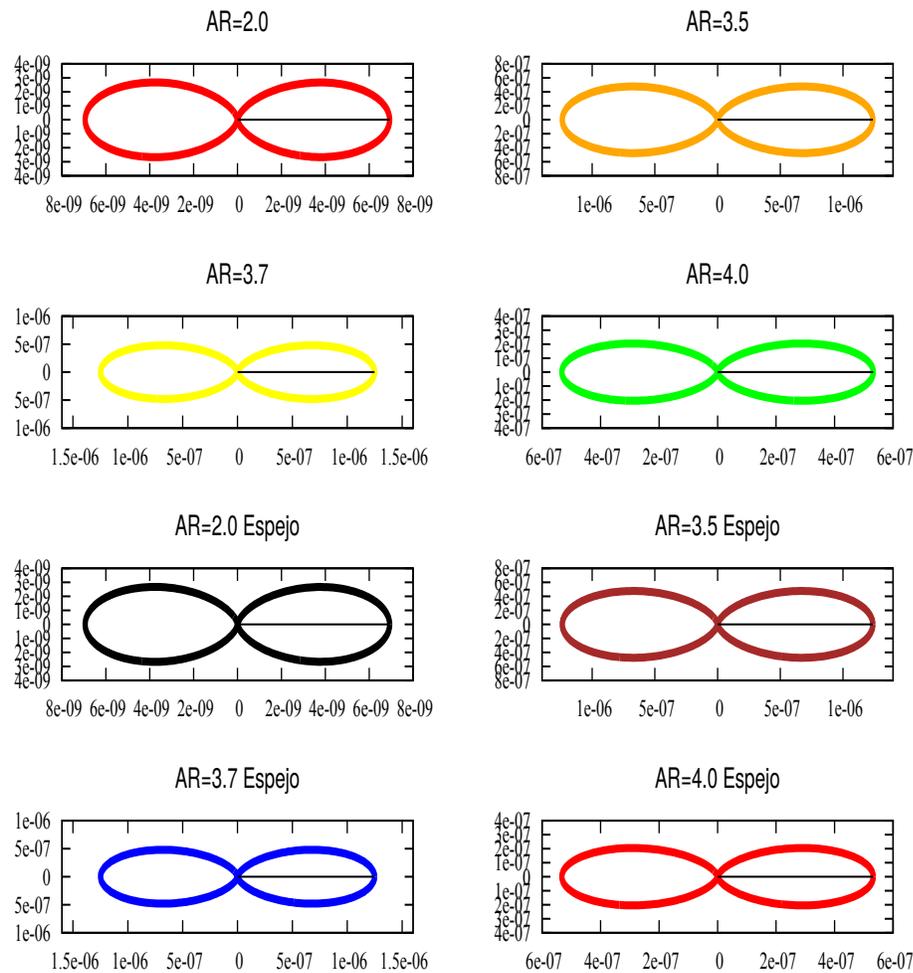


**Figura 37:** Frentes de onda planos incidiendo en un arreglo de nanoantenas que actúan como fuentes puntuales secundarias de donde emergen ondas que introducen una fase  $\phi_j$  a lo largo del eje  $\hat{z}$

En la figura 37 se ilustra la situación. Tenemos frentes de onda planos (líneas discontinuas rojas) que inciden sobre un arreglo de nanoantenas representadas como fuentes puntuales, de donde emergen ondas de amplitud  $E_{0,j}$  y fase  $\phi_j$  que dependen de la posición a lo largo del eje  $\hat{z}$ . Como nuestro diseño consiste de ocho elementos, la diferencia de fase entre nanoantenas vecinas,  $\Delta\phi = \phi_{j+1} - \phi_j$ , es de  $\Delta\phi = \frac{\pi}{4}$ . La separación entre nanoantenas  $\Lambda$  debe ser menor a la longitud de onda y hemos escogido  $\Lambda = 0.3\lambda_0$ , por lo que la longitud de la metasuperficie (o supercélula) es de  $\Lambda_{sc} = 8\Lambda = 2.4\lambda_0$ . La figura 37 ilustra un caso en el que las nanoantenas radian ondas esféricas hacia adelante. Sin embargo, para tener una evaluación más completa del diseño, calculamos con el método DDA las distribuciones angulares para todos los ángulos

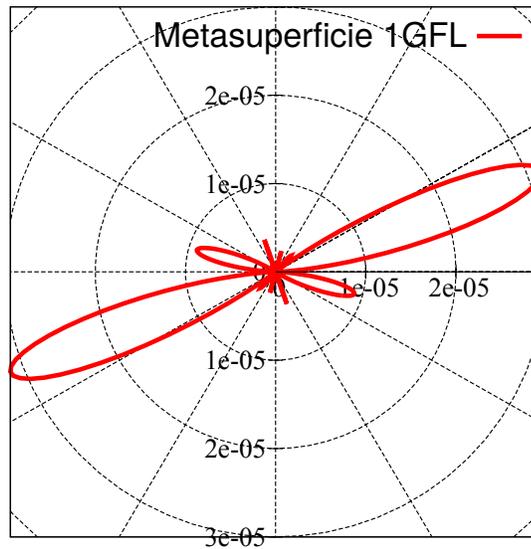
de espacimientto  $\theta$ .

La figura 38 muestra, individualmente, el patrón angular de espacimientto de cada una de las ocho nanoantenas que conforman el arreglo. Como se observa, todas tienen la forma de un patrón dipolar que consiste de dos lóbulos a lo largo del eje óptico. También vemos que la amplitud de las nanoantenas es diferente, pues los elementos son de diferente tamaño.



**Figura 38:** Patrones angulares de espacimientto de las ocho nanoantenas que conforman el diseño.

En el campo lejano a la metasuperficie, la amplitud de la radiación espacida es la suma (o interferencia) de todas las ondas espacidas por las nanoantenas dipolares. La figura 39 muestra el patrón angular de espacimientto que produce la interferencia de las ocho nanoantenas dipolares. En esta figura se puede ver que, debido al gradiente de fase, el patrón de espacimientto ya no es simétrico con respecto a la dirección de incidencia. Los lóbulos dipolares fueron des-



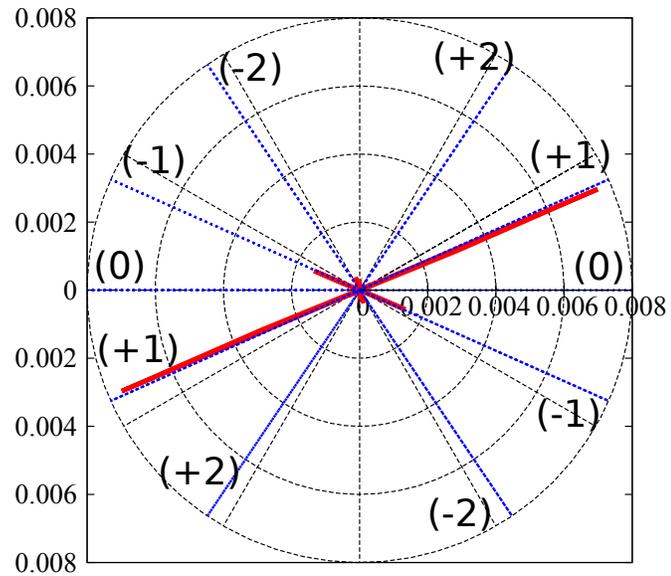
**Figura 39: Patrón angular de esparcimiento de un gradiente de fase lineal (GFL).**

viados alrededor de  $\theta \approx 21^\circ$  con respecto al eje óptico y el patrón de radiación adquirió una mayor directividad a ese ángulo.

Con la finalidad de observar los efectos macroscópicos de la metasuperficie, se reproduce 20 veces el diseño del GFL a lo largo del eje  $\hat{z}$ . En la figura 40 se muestra el patrón de esparcimiento que producen 20 GFL (líneas rojas). También se indican las direcciones a las cuales una rejilla de difracción (RD) con periodicidad  $\Lambda_{sc}$  generaría en sus ordenes tanto para reflexión como transmisión. En este caso la rejilla soportaría los ordenes  $\pm 1$ ,  $\pm 2$  y el orden cero (líneas verdes).

De la figura 40 se observa como el patrón angular de esparcimiento se transformó prácticamente en un rayo de luz, concentrando la mayor cantidad de campo en los ángulos de esparcimiento  $\theta_t = 23^\circ$  y  $\theta_r = 203^\circ$ . Por otro lado, las direcciones de los ordenes (+1) de la RD, tanto en reflexión como transmisión, corresponden a los ángulos de esparcimiento  $\theta_t^{(+1)} = 24^\circ$  y  $\theta_r^{(+1)} = 204^\circ$ , respectivamente. En la misma figura se puede notar que la metasuperficie acopla una porción de la energía en las direcciones cercanas a los ordenes (-1), debido a que las amplitudes de los campos esparcidos no son uniformes (figura 38). Como se puede observar, el diseño propuesto realiza un buen desempeño a pesar de estas limitaciones.

Esta evaluación es un ejemplo particular que ilustra el funcionamiento de un diseño de metasuperficie. Si bien el modelo no toma en cuenta los efectos que produce la superficie plana



**Figura 40: Patrón angular de esparcimiento de una metasuperficie compuesta por 20 GFL.**

en la respuesta de las nanonatenas (sustrato), ni el campo esparcido en dirección especular (directo). Este modelo brinda la posibilidad de conocer, en una primera aproximación, las respuestas macroscópicas de los diseños de metasuperficie con nanoantenas ópticas, así como evaluar su operabilidad en la región visible del espectro electromagnético.

## Capítulo 6. Resumen y conclusiones

---

Esta tesis aborda el campo de la nanofotónica, donde la interacción de radiación electromagnéticas con elementos de dimensiones menores a la longitud de onda (nanométricos) producen efectos macroscópicos diferentes a los conocidos. Dentro de la fotónica se encuentra la plasmónica, un campo que se concentra en elementos conductores y es en el que se encuadra el presente trabajo. A continuación presentamos un resumen del trabajo, junto con las aportaciones y conclusiones más relevantes que encontramos.

El objetivo es estudiar el cambio de fase (denotado como  $\Delta\phi$ ) de la onda esparcida por nanopartículas metálicas (nanoantenas). Cuando estas nanoantenas se confeccionan en arreglos sobre una superficie plana forman una metasuperficie. La metasuperficie es un dispositivo innovador que, por sus propiedades macroscópicas, puede modificar la amplitud, fase y polarización de los rayos de luz que se reflejan y/o transmiten a través de ella, reemplazando eficazmente la función de dispositivos convencionales como las lentes y los prismas. Estas metasuperficies utilizan los efectos locales de fase que producen nanoantenas individualmente. Para su diseño, es indispensable controlar la fase de la onda esparcida por cada nanoantena en el intervalo completo de 0 a  $2\pi$ . Esto, además de la amplitud de esparcimiento, que también juega un papel importante.

Motivados por los diseños y las aplicaciones que prometen, esta tesis exploró la posibilidad de controlar la fase de la onda esparcida por nanoantenas con geometrías simples, con el propósito de diseñar una metasuperficie que opere en la región visible del espectro electromagnético.

Se comenzó por estudiar el caso analítico de nanoantenas esféricas y elipsoidales dentro de la aproximación cuasiestática  $x \ll 1$  (o límite dipolar), donde  $x$  es el parámetro de tamaño. Para el caso esférico el parámetro de tamaño es  $x = ka \ll 1$ , donde  $a$  es el radio de la esfera. Se encontró que, tanto los  $\Delta\phi$  como la amplitud esparcida vienen de la polarizabilidad cuasiestática  $\alpha(\omega)$  (34), y al ser un parámetro dependiente de la frecuencia tiene un cambio de fase de  $\pi$  (cambio de signo) al pasar por la resonancia de plasmones localizados de superficie (LSPR, por sus siglas en inglés). Se encontró que, dentro de esta aproximación, los cambios de fase son independientes del tamaño de la partícula y dependen únicamente de la relación

entre  $\epsilon_e(\omega)$  y  $\epsilon_m$ , pues estas determinan el signo y la parte imaginaria de  $\alpha(\omega)$ .

Para mejorar estos resultados se aplicó una corrección al modelo de la polarizabilidad cuasiestática, conocida como de reacción de radiación ( $RR$ ). Esta corrección toma en cuenta el tamaño de la partícula al incorporar el término  $i \frac{k^3}{6\pi\epsilon_0} \alpha(\omega)$  a la polarizabilidad cuasiestática. La aplicación de esta corrección se nombró polarizabilidad efectiva (56) y se compararon resultados de las propiedades de esparcimiento ( $Q_{ext}$ ,  $Q_{abs}$ ,  $Q_{esp}$  y  $\Delta\phi$ ) de esferas de plata con los obtenidos con base en teoría de Mie. Se encontró que la polarizabilidad efectiva mejora los resultados incluso ligeramente fuera del límite dipolar.

Se utilizó el modelo de polarizabilidad efectiva tanto para esferas y esferoides prolatos, expresiones (57) y (58) respectivamente, y se encontró que, en el caso esféricos y con partículas con radios  $a \lesssim 30\text{nm}$ , los  $\Delta\phi$  son muy abruptos antes y después de resonancia, para radios mayores éstos se suavizan alcanzando valores dentro del rango de 0 a  $\pi$  en la región cercana a la LSPR ( $\sim 340\text{nm}$  en esferas de plata).

Para el caso de esferoides prolatos con semiejes  $a = b < c$  (parámetro de tamaño es  $x = kc \ll 1$ ). Se encontró que, al igual que el caso esférico, responden con  $\Delta\phi$  abruptos antes y después de la LSPR. Sin embargo, al incrementa la relación de aspecto ( $AR = \frac{c}{a}$ ), estos cambios no se suavizan como en las esferas, sino se desplazan al infrarrojo junto con la LSPR. Con esta característica en los esferoides se observó que dentro del espectro de luz visible es posible alcanzar cualquier valor de fase de entre 0 a  $\pi$  utilizando esferoides prolatos y variando la relación de aspecto entre 2 y 7.

Para explorar la respuesta en fase de geometrías no canónicas se utilizó el método de la aproximación de dipolos discretos (DDA, por sus siglas en inglés). Los parámetros más importantes que utiliza el método, y que determinan la precisión en sus resultados, son la asignación de polarizabilidad (73) y la distancia entre dipolos (o interdipolar)  $d$ . En la validación del método se encontró que los resultados de las propiedades de esparcimiento ( $Q_{abs}$ ,  $Q_{esp}$  y  $\Delta\phi$ ) cerca de la región de la LSPR tienen muy buena precisión con partículas esféricas de oro con radios entre 10 y 50nm ( $\bar{d} = 1.2\text{nm}$ ). En la región de  $\lambda > 0.550\mu\text{m}$  se observó que los errores fraccionales comienzan a ser significativo, principalmente  $\text{Er}^{abs}$ , pero al reducir a la mitad la distancia interdipolar ( $\bar{d} = 0.6\text{nm}$ ) estos errores lo hacen de la misma

manera. También se encontró que los errores fraccionales de  $Er^{esp}$  y  $Er^\phi$  son muy parecidos para esferas de oro y plata, pero los errores de  $Er^{abs}$  de esferas de plata son considerablemente mucho mayores. También se encontró que, de todas las comparaciones del DDA con teoría de Mie, la respuesta en fase  $\Delta\phi$  es la que presenta mayor precisión, incluso en partículas de 100nm a una longitud de onda de  $\lambda = 550\text{nm}$  ( $Er^\phi < 1\%$ ).

Utilizando el DDA se estudió la respuesta de una geometría de nanonata en forma de cilindro con terminaciones semiesféricas (nanobarra) compuesta de oro. Se encontró que al aumentar sus dimensiones longitudinalmente, dejando fijo el radio, los cambios de fase aumentan gradualmente hasta llegar a un valor  $\sim \pi$  en la nanobarra con  $AR = 5$ . También se observó que la LSPR tiene un corrimiento al infrarrojo y ésta va acompañada con un aumento en la  $Q_{esp}$ , cubriendo el espectro de luz visible con cilindros de hasta  $AR = 5$ .

Se estudió la respuesta en fase de nanobarras rotadas en un plano perpendicular a la dirección de incidencia. Se encontró que las respuestas en fase de los campos  $E_{\parallel}$  y  $E_{\perp}$  son diferentes entre sí. Mientras el campo  $E_{\parallel}$  tiene cambios de fase a diferentes ángulos de rotación  $\Phi$ , el campo  $E_{\perp}$  los tiene sólo a variaciones del  $AR$ . En ambos casos se consiguieron cambios graduales dentro del rango de 0 a  $\pi$ .

Para lograr el control de fase en el rango completo de  $2\pi$ , se estudió el caso de rotaciones mayores a  $\Phi = 90^\circ$ . Esta técnica, conocida como nanoantenas espejo, agrega un factor de  $\pi$  únicamente al campo  $E_{\perp}$ . Se propuso el diseño de un gradiente de fase lineal (GFL) para luz con polarización cruzada que opere a una longitud de onda  $\lambda_0 = 633\text{nm}$  (rojo) formado por nanobarras rotadas y nanoantenas espejo inclinadas  $45^\circ$  y  $135^\circ$  respecto a la polarización lineal incidente, respectivamente.

Finalmente, se modeló con en el principio de Huygens-Fresnel el diseño del GFL propuesto y se observó que éste realiza un buen desempeño a pesar de no contar con la uniformidad en las amplitudes de los campos esparcidos por las nanoantenas. Para evaluar la respuesta macroscópica de la metasuperficie, se repitió el GFL y se observó que el patrón angular de esparcimiento se redujo prácticamente a un rayo de luz dirigido a los ángulos de esparcimiento  $\theta_t = 23^\circ$  y  $\theta_r = 203^\circ$  en transmisión y reflexión, respectivamente.

## Lista de referencias

- 145-1983, I. S. (1983). Ieee standard definitions of terms for antennas. *IEEE Std 145-1983*, pp. 1–31.
- Aieta, F., Genevet, P., Yu, N., Kats, M. A., Gaburro, Z., y Capasso, F. (2012). Out-of-plane reflection and refraction of light by anisotropic optical antenna metasurfaces with phase discontinuities. *Nano Letters*, **12**(3): 1702–1706.
- Ashcroft, N. y Mermin, N. (1976). *Solid State Physics*. Saunders College. Philadelphia.
- Atwater, H. A. y Polman, A. (2010). Plasmonics for improved photovoltaic devices. *Nature Materials*, **9**(3): 205–213.
- Bharadwaj, P., Deutsch, B., y Novotny, L. (2009). Optical antennas. *Adv. Opt. Photon.*, **1**(3): 438–483.
- Blanchard, R., Aoust, G., Genevet, P., Yu, N., Kats, M. A., Gaburro, Z., y Capasso, F. (2012). Modeling nanoscale v-shaped antennas for the design of optical phased arrays. *Phys. Rev. B*, **85**: 155457.
- Bohren, C. F. y Huffman, D. R. (1983). *Absorption and Scattering of Light by Small Particles*. Wiley and Sons, Inc. New York. 530 pp.
- Collinge, M. J. y Draine, B. T. (2004). Discrete-dipole approximation with polarizabilities that account for both finite wavelength and target geometry. *J. Opt. Soc. Am. A*, **21**(10): 2023–2028.
- De la Cruz, S., Méndez, E. R., Macías, D., Salas-Montiel, R., y Adam, P. M. (2012). Compact surface structures for the efficient excitation of surface plasmon-polaritons. *physica status solidi (b)*, **249**(6): 1178–1187.
- De la Cruz Arreola, S. (2013). *Diseño de estructuras plasmónicas*. Tesis de doctorado, Centro de Investigación Científica y de Educación Superior de Ensenada.
- Devoe, H. (1964). Optical properties of molecular aggregates. i. classical model of electronic absorption and refraction. *The Journal of Chemical Physics*, **41**: 393–400.
- Draine, B. T. (1988). The discrete-dipole approximation and its application to interstellar graphite grains. *Astrophys. J.*, **333**: 848–872.
- Draine, B. T. y Flatau, P. J. (1994). Discrete-dipole approximation for scattering calculations. *J. Opt. Soc. Am. A*, **11**(4): 1491–1499.
- Draine, B. T. y Flatau, P. J. (2013). User guide for the discrete dipole approximation code `ddscat 7.3`. *ArXiv e-prints*.
- Draine, B. T. y Goodman, J. (1993). Beyond clausius-mossotti - wave propagation on a polarizable point lattice and the discrete dipole approximation. *Astrophys. J.*, **405**: 685–697.
- Griffiths, D. (1999). *Introduction to Electrodynamics*. Prentice Hall. p. 200.

- Gutkowicz-Krusin, D. y Draine, B. T. (2004). Propagation of electromagnetic waves on a rectangular lattice of polarizable points. *ArXiv Astrophysics e-prints*.
- Hirsch, L., Stafford, R., Bankson, J., Sershen, S., Rivera, B., Price, R., Hazle, J., Halas, N., y West, J. (2003). Nanoshell-mediated near-infrared thermal therapy of tumors under magnetic resonance guidance. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, **100**(23): 13549–13554.
- Hutley, M. C. y Maystre, D. (1976). The total absorption of light by a diffraction grating. *Optics Communications*, **19**: 431–436.
- Huygens, C. (1690). *Traité de la lumière: où sont expliquées les causes de ce qui luy arrive dans la reflexion, & dans la refraction, et particulièrement dans l'étrange refraction du Cristal d'Islande*. Pierre Vander Aa.
- Jackson, J. (1962). *Classical electrodynamics*. Wiley. p. 119.
- Johnson, P. B. y Christy, R. W. (1972). Optical constants of the noble metals. *Phys. Rev. B*, **6**: 4370–4379.
- Kats, M. A., Yu, N., Genevet, P., Gaburro, Z., y Capasso, F. (2011). Effect of radiation damping on the spectral response of plasmonic components. *Opt. Express*, **19**(22): 21748–21753.
- Kretschmann, E. y Raether, H. (1968). Radiative decay of nonradiative surface plasmons excited by light. *Z. Naturforsch. A*, **23**: 2135.
- Larouche, S. y Smith, D. R. (2012). Reconciliation of generalized refraction with diffraction theory. *Opt. Lett.*, **37**(12): 2391–2393.
- Leuthold, J., Hoessbacher, C., Muehlbrandt, S., Melikyan, A., Kohl, M., Koos, C., Freude, W., Dolores-Calzadilla, V., Smit, M., Suarez, I., Martínez-Pastor, J., Fittrakis, E., y Tomkos, I. (2013). Plasmonic communications: Light on a wire. *Opt. Photon. News*, **24**(5): 28–35.
- Loke, V. L., Mengüç, M. P., y Nieminen, T. A. (2011). Discrete-dipole approximation with surface interaction: Computational toolbox for {MATLAB}. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, **112**(11): 1711 – 1725.
- Loo, C., Lin, A., Hirsch, L., Lee, M., Barton, J., N., H., J., W., y R., D. (2004). Nanoshell-enabled photonics-based imaging and therapy of cancer. *Technology in Cancer Research and Treatment*, **3**(1): 33–40.
- Maier, S. (2007). *Plasmonics: Fundamentals and Applications: Fundamentals and Applications*. Springer. p. 67.
- Maradudin, A. A., McGurn, A. R., y Méndez, E. R. (1995). Surface plasmon polariton mechanism for enhanced backscattering of light from one-dimensional randomly rough metal surfaces. *J. Opt. Soc. Am. A*, **12**(11): 2500–2506.
- Mc Donald, J., Golden, A., y Jennings, S. G. (2009). Opendda: a novel high-performance computational framework for the discrete dipole approximation. *ArXiv e-prints*.

- Mie, G. (1908). Contributions to the optics of turbid media, particularly of colloidal metal solutions. *Ann. Phys.*, **25**(3): 377–445.
- Nie, S. y Emory, S. R. (1997). Probing single molecules and single nanoparticles by surface-enhanced raman scattering. *Science*, **275**(5303): 1102–1106.
- Novotny, L. (2007). Effective wavelength scaling for optical antennas. *Phys. Rev. Lett.*, **98**: 266802.
- Novotny, L. y Hecht, B. (2006). *Principles of Nano-Optics*. Cambridge University Press. Cambridge, p. 494.
- Otto, A. (1968). Excitation of nonradiative surface plasma waves in silver by the method of frustrated total reflection. *Zeitschrift für Physik*, **216**(4): 398–410.
- Pors, A. y Bozhevolnyi, S. (2013a). Efficient and broadband quarter-wave plates by gap-plasmon resonators. *Optics Express*, **21**(3): 2942–2952.
- Pors, A. y Bozhevolnyi, S. I. (2013b). Plasmonic metasurfaces for efficient phase control in reflection. *Opt. Express*, **21**(22): 27438–27451.
- Pors, A., Nielsen, M. G., Eriksen, R. L., y Bozhevolnyi, S. I. (2013). Broadband focusing flat mirrors based on plasmonic gradient metasurfaces. *Nano Letters*, **13**(2): 829–834.
- Purcell, E. M. y Pennypacker, C. R. (1973). Scattering and absorption of light by nonspherical dielectric grains. *Astrophys. J.*, **186**: 705–714.
- Rahmani, A., Chaumet, P. C., y Bryant, G. W. (2002). Coupled dipole method with an exact long-wavelength limit and improved accuracy at finite frequencies. *Opt. Lett.*, **27**(23): 2118–2120.
- Rakić, A. D., Djurišić, A. B., Elazar, J. M., y Majewski, M. L. (1998). Optical properties of metallic films for vertical-cavity optoelectronic devices. *Appl. Opt.*, **37**(22): 5271–5283.
- Rayleigh, J. W. S. (1871). On the scattering of light by small particles. *Philos. Mag.*, **41**: 447–450.
- Ritchie, R. H., Arakawa, E. T., Cowan, J. J., y Hamm, R. N. (1968). Surface-Plasmon Resonance Effect in Grating Diffraction. *Physical Review Letters*, **21**: 1530–1533.
- Schmehl, R., Nebeker, B. M., y Hirleman, E. D. (1997). Discrete-dipole approximation for scattering by features on surfaces by means of a two-dimensional fast fourier transform technique. *J. Opt. Soc. Am. A*, **14**(11): 3026–3036.
- Schuller, J. A., Barnard, E. S., Cai, W., Jun, Y. C., White, J. S., y Brongersma, M. L. (2010). Plasmonics for extreme light concentration and manipulation. *Nature Materials*, **9**: 193–204.
- Stone, J. (1963). *Radiation and optics: an introduction to the classical theory*. McGraw-Hill. p. 87.

- Sun, S., Yang, K.-Y., Wang, C.-M., Juan, T.-K., Chen, W. T., Liao, C. Y., He, Q., Xiao, S., Kung, W.-T., Guo, G.-Y., Zhou, L., y Tsai, D. P. (2012). High-Efficiency Broadband Anomalous Reflection by Gradient Meta-Surfaces. *Nano Letters*, **12**: 6223–6229.
- Taubenblatt, M. A. y Tran, T. K. (1993). Calculation of light scattering from particles and structures on a surface by the coupled-dipole method. *J. Opt. Soc. Am. A*, **10**(5): 912–919.
- Van de Hulst, H. C. (1981). *Light Scattering by Small Particles*. Dover. New York. 470 pp.
- Van Wees, B. J., van Houten, H., Beenakker, C. W. J., Williamson, J. G., Kouwenhoven, L. P., van der Marel, D., y Foxon, C. T. (1988). Quantized conductance of point contacts in a two-dimensional electron gas. *Phys. Rev. Lett.*, **60**(9): 848–850.
- Wassel, H., Dai, D., Tiwari, M., Valamehr, J., Theogarajan, L., Dionne, J., Chong, F., y Sherwood, T. (2012). Opportunities and challenges of using plasmonic components in nanophotonic architectures. *Emerging and Selected Topics in Circuits and Systems*, **2**(2): 154–168.
- West, C. S. y O'Donnell, K. A. (1995). Observations of backscattering enhancement from polaritons on a rough metal surface. *J. Opt. Soc. Am. A*, **12**(2): 390–397.
- Yu, N., Genevet, P., Kats, M. A., Aieta, F., Tetienne, J.-P., Capasso, F., y Gaburro, Z. (2011). Light propagation with phase discontinuities: Generalized laws of reflection and refraction. *Science*, **334**(6054): 333–337.
- Yu, N., Aieta, F., Genevet, P., Kats, M. A., Gaburro, Z., y Capasso, F. (2012). A broadband, background-free quarter-wave plate based on plasmonic metasurfaces. *Nano Letters*, **12**(12): 6328–6333.
- Yurkin, M. A. y Hoekstra, A. G. (2011). The discrete-dipole-approximation code adda: Capabilities and known limitations. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, **112**(13): 2234 – 2247. Polarimetric Detection, Characterization, and Remote Sensing.
- Yurkin, M. A., Min, M., y Hoekstra, A. G. (2010). Application of the discrete dipole approximation to very large refractive indices: Filtered coupled dipoles revived. *Phys. Rev. E*, **82**: 036703.