

Universidad Nacional Autónoma de México

Centro de Nanociencias y Nanotecnología Licenciatura en Nanotecnología

Efectos de interferencia y difracción en sistemas que involucran plasmones polaritones de superficie

T E S I S

QUE PARA OBTENER EL GRADO DE: Licenciado en Nanotecnología

PRESENTA: David Enrique Medina Quiroz

DIRECTOR DE TESIS: Eugenio Rafael Méndez Méndez



Ensenada, Baja California

Febrero, 2019



Universidad Nacional Autónoma de México



UNAM – Dirección General de Bibliotecas Tesis Digitales Restricciones de uso

DERECHOS RESERVADOS © PROHIBIDA SU REPRODUCCIÓN TOTAL O PARCIAL

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

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

Efectos de interferencia y difracción en sistemas que involucran plasmones polaritones de superficie

por

David Enrique Medina Quiroz

Tesis presentada para obtener el grado de

Licenciado en Nanotecnología

 ${\rm en}~{\rm el}$

Centro de Nanociencias y Nanotecnología

Universidad Nacional Autónoma de México

Ensenada, Baja California. Febrero, 2019

Hago constar que el trabajo que presento es de mi autoría y que todas las ideas, citas textuales, datos, ilutraciones, gráficas, etc. Sacados de cualquier obra o debidas al trabajos de terceros, han sido debidamente identificados y citados en el cuerpo del texto y en la bibliografía y acepto que en caso de no respetar lo anterior puedo ser sujeto a sanciones universitarias. Afirmo que el material presentado no se encuentra protegido por derechos de autor y me hago responsable de cualquier reclamo relacionado con la violación de derechos de autor.

David Enrique Medina Quiroz

A mis abuelos, tíos y primos

A mi padre, madre y hermanos

A toda la gente que me acompaño en este corto tramo del gran camino al que llaman vida

Agradecimientos

A mi madre, que a pesar de la distancia, seguía sintiendo su profundo amor. Que fue indispensable para seguir adelante.

A mi padre, quien me apoyo completamente en el momento en el que decidí emprender este sueño y me inspiro a crecer y a ser una mejor persona.

A mi hermano Miguel, que con su compañía y amistad, pude sonreír hasta en los días más tristes.

A mi hermano Mauricio, que teniendo una vida por delante, ha hecho de mi vida más brillante e inimaginable sin su presencia.

A mis abuelos, que me dieron su amor y apoyo incondicional a través de toda mi vida, lo que me lleno de confianza y ansias de ser alguien mejor.

A mis tíos, que sin importar cuanto tiempo pasemos sin hablar, sé que siempre podré contar con ellos.

A la cuarta generación de la licenciatura, donde jóvenes de todo el país integraron una gran familia y me permitieron formar parte de ella.

A Cristóbal, Santino, Sebastián, Oscar, José Antonio, Alex y Cesar por la camaradería que hizo que mi estancia en Ensenada y en la carrera nunca fuera aburrida.

A América, que a pesar del poco tiempo que ha estado en mi vida, el cariño que me ha dado no lo cambiaría por nada.

Al Dr. Eugenio Méndez por su constante apoyo y paciencia, que además de conocimiento, también me proveyó de habilidades para ser un mejor científico y persona.

A los doctores y técnicos del CNyN y el CICESE, que tenían sus puertas abiertas para ayudar en cualquier momento a los estudiantes.

A los profesores de la carrera que me permitieron tener una educación de calidad.

A la comunidad UNAM-CNyN, que me permitió tener una vida estudiantil plena.

Al proyecto CONACYT CB-2016-01 por el apoyo económico para la realización de esta tesis.

Índice general

1. Introducción

2. Fundamentos teóricos y métodos numéricos							
	2.1.	Ondas	electromagnéticas en sistemas invariantes en una dirección	9			
	2.2.	2. Plasmones polaritones de superficie					
	2.3.	3. Excitación de PPS por medio de rejillas de difracción					
		2.3.1.	Rejillas senoidales	14			
		2.3.2.	Rejillas con doble periodo	16			
	2.4.	El mét	odo integral	18			
		2.4.1.	Aplicación del método integral al caso de rejillas metálicas	21			
3.	3. Fabricación y caracterización de muestras						
	3.1.	.1. Fabricación					
		3.1.1.	Depósito de resina fotosensible	23			
		3.1.2.	Litografía por interferencia láser	24			
	3.2.	Caract	erización	28			
		3.2.1.	microscopia electrónica de barrido (SEM)	28			
		3.2.2.	Microscopía de fuerza atómica (AFM)	29			
	3.3.	Caract	erización óptica	31			
		3.3.1.	Estimación del período	31			
		3.3.2.	Estimación de la amplitud	32			

 $\mathbf{4}$

Resultados con las muestras fabricadas				
4.1.	Calcul	os con rejillas modelo	34	
	4.1.1.	Campo lejano	35	
	4.1.2.	Campo cercano	38	
4.2.	Espare	ímetro	39	
Res	umen v	v Conclusiones	42	
	Res 1.1. 1.2.	Resultados 4.1. Calculo 4.1.1. 4.1.2. 4.2. Esparc Resumen y	Resultados con las muestras fabricadas 4.1. Calculos con rejillas modelo. 4.1.1. Campo lejano 4.1.2. Campo cercano 4.2. Esparcímetro Resumen y Conclusiones	

Índice de tablas

3-1.	Valores de voltaje medidos para cada uno de los órdenes de difracción	33
3-2.	Valores de la eficiencia de difracción para cada orden.	33

Índice de figuras

2-1.	Geometría para la propagación de PPS en una interfaz dieléctrico-metal	12
2-2.	Acoplamiento a un PPS utilizando el orden -1 de una rejilla	14
2-3.	Reflectividad de una rejilla senoidal de oro con $h=20{\rm nm}$ y $\Lambda=524{\rm nm},$ supo-	
	niendo una longitud de onda $\lambda=810\mathrm{nm.}$	15
2-4.	Difracción de un PPS por una rejilla	15
2-5.	Ilustración de la construcción del perfil de una superficie con dos periodicidades.	16
2-6.	Calculos del campo total para dos rejillas	17
2-7.	Geometría considerada para el problema electromagnético	18
2-8.	Un haz incidente en una rejilla de doble periodo	21
2-9.	Dos haces incidentes en simetría especular en una rejilla con doble periodicidad.	22
3-1.	Deagrama esquematico que ilustra la perparación de placas cubiertas con foto- rresina. a) Se colocan 5 gotas de resina fotosensible, b) Se hace girar la muestra	
	10 s a 4000 rev/min, c) Se hornea la muestra 1 hr a 110°C	24
3-2.	Interferencia de dos haces coherentes	24
3-3.	Arreglo para el interferómetro del espejo de Lloyd.	25
3-4.	Diagrama esquemático que muestra las contribuciones a la amplitud compleja so-	
	bre el sustrato en el arreglo del interferometro de Lloyd. Si los rayos son paralelos	
	y el espejo es perpendicular al sustrato, $\theta_1 = \theta_2 = \theta$	26
3-5.	Cambio de ángulo del sistema para generar dos periodos en una rejilla	28
3-6.	Imagen SEM de BSE con medidas de una zona de la rejilla	29
3-7.	Imagen de AFM visualizada en Gwyddion	29

3-8.	Imagén 3D de AFM de la rejilla con doble periodicidad.	30
3-9.	Perfil de la rejilla con doble periodicidad.	30
3-10.	Arreglo para la medición de la distancia entre ordenes de difracción	31
3-11.	Arreglo para la medición de intensidades de los órdenes de difracción	32
4-1.	Superficie tratada en los cálculos computacionales.	35
4-2.	CDR a diferentes ángulos de incidencia alrededor del ángulo de acoplamiento de	
	PPS	36
4-3.	CDR en función del ángulo de incidencia y ángulo de difracción	37
4-4.	Campo esparcido para ángulos de incidencia alrededor del ángulo de acoplamien-	
	to con el PPS	38
4-5.	Diagrama esquemático del arreglo experimental.	39
4-6.	Mediciones de la luz esparcida a incidencia normal	39
4-7.	Intensidad de la distribución angular de luz esparcida para diferentes ángulos	40

Efectos de interferencia y difracción en sistemas que involucran plasmones polaritones de superficie

by

David Enrique Medina Quiroz

Abstract

We present a study of the interaction of light beams with gold surfaces whose profile has two periodic components. For certain directions, one of the periodic components can couple the beam into surface plasmon polaritons (SPP), which are subsequently diffracted by the second one, producing a new beam that emerges from the surface. These effects were studied with a numerical method based on the solution of two coupled integral equations that determine the "source functions" and, in turn, the diffracted field. Besides showing the presence of the beam due to the diffraction of the PPS, the numerical results show that that it is possible to produce interference effects between beams that have been through the described processes of double diffraction. On the experimental side, double-period gratings were fabricated by interference lithography, which were later characterized by optical techniques, as well as electronic and atomic force microscopies. The results of the diffraction experiments with the fabricated samples, show the presence of the expected phenomena of double diffraction, and are in good agreement with the numerical results.

Efectos de interferencia y difracción en sistemas que involucran plasmones polaritones de superficie

por

David Enrique Medina Quiroz

Resumen

Se presenta un estudio de la interacción de haces de luz con superficies de oro cuyo perfil tiene dos componentes periódicas. Para ciertas direcciones de incidencia, una de las componentes puede acoplar el haz a plasmones polaritones de superficie (PPS), que son posteriormente difractados por la segunda, produciendo un haz que emerge de la superficie. Estos efectos fueron estudiados utilizando un método de cálculo basado en la solución numérica de un par de ecuaciones integrales acopladas que determinan las "funciones fuente" y, a su vez, el campo difractado. Además de mostrar la aparición del haz debido a la difracción de los PPS, los resultados numéricos muestran que es posible producir interferencia entre haces que han pasado por los procesos descritos de doble difracción. Por el lado experimental, se fabricaron rejillas de doble periodo utilizando litografía de interferencia que fueron caracterizadas con técnicas ópticas, de microscopía electrónica y de fuerza atómica. Los resultados de los experimentos de difracción con las muestras fabricadas muestran la presencia de los fenómenos esperados de doble difracción y están en buen acuerdo con los resultados numéricos.

Capítulo 1

Introducción

En los últimos años, se han realizado grandes esfuerzos de investigación para mejorar los sistemas electrónicos de procesamiento y transmisión de información utilizando como base la manipulación de luz. Esta área se conoce como la fotónica y su rápido desarrollo tecnológico nos acerca cada día más a la realización de ese objetivo. Sin embargo, a pesar de que ya hay dispositivos fotónicos desarrollados y funcionales, el progreso en las investigaciones se ha visto limitado por varios factores. Uno de los más importantes es la dificultad de instrumentar elementos ópticos con dimensiones menores a las de la longitud de onda. Esto ha motivado el desarrollo de la nanofotónica, que estudia la interacción de la luz con estructuras con dimensiones para crear dispositivos ópticos más compactos, la nanofotónica ha llevado a estudiar situaciones físicas novedosas y ha abierto nuevas oportunidades de investigación y desarrollo.

Parte importante de la nanofotónica es la plasmónica, que estudia la interacción de luz con metales nanoestructurados y fronteras entre materiales metálicos y dieléctricos. En principio, para modelar la interacción de luz con el metal se utiliza el modelo de Drude, en el que se considera el material como un gas de electrones libres; es decir, como un plasma. El brillo "metálico", así como las propiedades de conducción térmica y eléctrica de los metales de deben a la presencia de este plasma, lo que da origen al nombre de esta rama.

Al iluminar la superficie de un metal, el campo re-radiado por los electrones libres excitados

interfiere destructivamente con el campo incidente, lo cual reduce la distancia de penetración en el medio y produce el campo reflejado. Esta distancia de penetración se conoce como la profundidad de piel del metal, que para el caso del visible es del orden de una décima parte de la longitud de onda de la luz incidente. Es claro entonces que, cuando se tienen estructuras más pequeñas que esta profundidad de piel, la respuesta óptica es muy distinta a la respuesta de los metales a otras escalas. Un ejemplo que ilustra lo distinta que puede ser la respuesta óptica de los metales nanoestructurados son los vitrales de las catedrales medievales, que deben su color a las resonancias que ocurren en nanopartículas metálicas [1]-[4]. Estas resonancias se conocen como resonancias del plasmón localizado de superficie (RPLS o LSPR, por sus siglas en inglés).

Por otro lado, existen también modos plasmónicos que toman la forma de ondas superficiales que se propagan en la frontera entre un dieléctrico y un metal; los llamados plasmones polaritones de superficie (PPS o SPP, por su siglas en inglés) [1]-[4]. Estos constituyen un estado acoplado entre un fotón y un plasmón (oscilación colectiva de los electrones libres en el metal) y, por analogía con lo que pasa con los campos electromagnéticos en el espacio libre, se pueden considerar como "cuasipartículas." Es entonces de esperarse que los PPS exhiban un comportamiento similar al de los fotones. Los PPS son de interés en nanofotónica por la posibilidad que ofrecen de guiar ondas con un nivel de confinamiento mucho mejor que el de las ondas en guías de onda dieléctricas. La plasmónica ofrece una capacidad de transmisión de señales similar a la de la óptica, pero con la posibilidad de realizar dispositivos más compactos que los que se utilizan para comunicaciones ópticas convencionales [5].

Los circuitos electrónicos se producen a escalas cada vez más pequeñas y se aumenta también la "velocidad del reloj" (velocidad de conmutación eléctrica entre los transistores). Esto es benéfico para el desempeño de los elementos de un circuito, como los transistores, pero va en detrimento de la velocidad de transmisión entre circuitos o partes de circuitos. La capacidad de transmisión de datos de una interconexión óptica (una fibra óptica, por ejemplo) puede ser 1000 veces mayor que la de una interconexión eléctrica. Sin embargo, las componentes ópticas también son 1000 veces más grandes que las electrónicas. Esto ilustra el hecho de que actualmente estas dos tecnologías no son muy compatibles y es por eso que se hacen muchos esfuerzos para mejorar esta situación mediante el desarrollo de circuitos plasmónicos. Aunque aún no se han logrado aplicaciones importantes, se considera que la plasmónica es una ciencia emergente que puede tener los puntos fuertes de la óptica y la electrónica [6, 7]. Además, existe la posibilidad de llevar señales ópticas y electrónicas en el mismo circuito.

Siguiendo la línea de aplicaciones en comunicaciones, vale la pena mencionar que los métodos de la teoría de información se han extendido recientemente para tratar la transmisión y el procesamiento de estados cuánticos [8]. Aunque muchos de los resultados cuánticos son similares a sus análogos clásicos, hay casos que no tiene una contraparte. Un ejemplo de esto ocurre en casos en los que se involucran estados enredados (*entangled*) [9, 10]. Es entonces natural considerar las propiedades cuánticas de transmisión de un canal de comunicación óptico que involucra el paso por PPS y no resulta sorprendente que la cuestión ya haya sido abordada por otros grupos de investigación [11, 12].

Se ha mostrado que los plasmones exhiben naturaleza bosónica y que, como tal, pueden exhibir los mismos fenómenos cuánticos que los fotones, además de que exhiben la misma estadística de fotones individuales [13]-[15]. No obstante, dadas las diferencias en la relación de dispersión entre la luz en el vacío y los PPS, y que en trabajos previos solo se ha considerado la propagación de PPS sobre regiones de unas cuantas micras, es interesante explorar las consecuencias que tiene, sobre los aspectos de coherencia y entrelazamiento, la conversión de "paquetes" de luz a PPS y su propagación sobre caminos más largos.

En esta tesis, se propone un estudio teórico y experimental del acoplamiento de haces de luz a PPS y de su posterior difracción por la interacción de éstos con estructuras superficiales. Con base en este tipo de procesos, proponemos estudiar la interferencia clásica entre haces que involucran PPS en su camino óptico. Además de las cuestiones de ciencia básica, los estudios aquí planteados son relevantes en aplicaciones en las que se desea emplear dispositivos plasmónicos en sistemas de información cuántica.

El trabajo está motivado por la posibilidad de transmitir información con base en principios cuánticos de estados acoplados. Sin embargo, un estudio completo del tema involucra aspectos de coherencia temporal y métodos teóricos y experimentales que rebasan los alcances de un trabajo de licenciatura. Nos enfocamos entonces a demostrar la posibilidad de diseñar y fabricar elementos ópticos basados en rejillas de difracción para acoplar y desacoplar luz a PPS de manera eficiente y a estudiar la interferencia de la luz que ha pasado por estos procesos.

Acorde a esto, el objetivo principal del trabajo consiste en estudiar efectos de interferencia clásica entre haces de luz generados por la difracción de plasmones polaritones de superficie. En los siguientes capítulos se presentan las bases teóricas necesarias y las actividades realizadas para alcanzar nuestro objetivo.

La tesis está organizada de la siguiente manera. Primero, en el capítulo 2, se presenta una introducción a los PPS en la que se describen sus principales propiedades y los métodos de acoplamiento. Se propone también en este capítulo un esquema para acoplar y desacoplar PPS mediante el uso de rejillas con dos periodos. En el capítulo 3 se presenta una descripción breve del método utilizado para realizar cálculos rigurosos de la interacción de luz con las rejillas propuestas, así como algunos resultados que muestran la viabilidad de la propuesta. El capítulo 4 está dedicado a presentar los detalles sobre la fabricación y caracterización de las muestras. Se describen el método de litografía óptica utilizado en la fabricación los métodos utilizados para la caracterización de las muestras fabricadas. Los resultados experimentales obtenidos con las muestras fabricadas se presentan en el capítulo 5 y, finalmente, en el capítulo 6 se presenta una discusión de los resultados y las principales conclusiones.

Capítulo 2

Fundamentos teóricos y métodos numéricos

Dentro del formalismo clásico, la interacción de la luz con metales está descrita por las ecuaciones de Maxwell. En este capítulo, mostramos que para ondas con polarización p, la interfaz plana entre un dieléctrico y un metal puede soportar ondas superficiales (los PPS). Se discuten también las principales propiedades de los PPS, así como su excitación por medio de rejillas.

El análisis se enfoca sobre el caso de ondas monocromáticas de frecuencia ω , de manera que todos los campos tienen una dependencia temporal del tipo $e^{-i\omega t}$ que será omitida de la notación.

En la sección 2.4 se dará una breve descripción del formalismo del método numérico utilizado para los cálculos computacionales de este trabajo. Así mismo, se presentaran calculos del campo para el sistema de rejillas presentado en la sección 2.3.2 como evidencia de la efectividad del método.

2.1. Ondas electromagnéticas en sistemas invariantes en una dirección

En ausencia de cargas y corrientes externas, las ecuaciones de Maxwell, que corresponden a las leyes de Ampere y Faraday, se pueden escribir de la forma (sistema gaussiano de unidades):

$$\nabla \times \mathbf{H} = -i\frac{\omega}{c}\varepsilon \mathbf{E},\tag{2-1a}$$

$$\nabla \times \mathbf{E} = i \frac{\omega}{c} \mathbf{H},\tag{2-1b}$$

donde **E** y **H** son el campo eléctrico y magnético respectivamente, ε es la permitividad eléctrica del medio y c es la velocidad de la luz.

Suponemos ahora que los campos son invariantes en una dirección; que, sin perdida de generaidad, escogemos como el eje y de nuestro sistema cartesiano de referencia. Desarrollando los rotacionales de las ecuaciones (2-1) y considerando que las derivadas con respecto a y son cero, se encuentra que

$$-\frac{\partial H_y}{\partial z}\hat{x} - \left[\frac{\partial H_z}{\partial x} - \frac{\partial H_x}{\partial z}\right]\hat{y} + \frac{\partial H_y}{\partial x}\hat{z} = -i\varepsilon\frac{\omega}{c}\left[E_x\hat{x} + E_y\hat{y} + E_z\hat{z}\right],\tag{2-2a}$$

$$-\frac{\partial E_y}{\partial z}\hat{x} - \left[\frac{\partial E_z}{\partial x} - \frac{\partial E_x}{\partial z}\right]\hat{y} + \frac{\partial E_y}{\partial x}\hat{z} = i\frac{\omega}{c}\left[H_x\hat{x} + H_y\hat{y} + H_z\hat{z}\right].$$
 (2-2b)

De estas ecuaciones se pueden obtener los siguientes dos conjuntos de ecuaciones

$$\frac{\partial E_y}{\partial z} = -i\frac{\omega}{c}H_x, \qquad \frac{\partial E_y}{\partial x} = i\frac{\omega}{c}H_z, \qquad \left[\frac{\partial H_z}{\partial x} - \frac{\partial H_x}{\partial z}\right] = i\frac{\omega}{c}\varepsilon E_y, \qquad (2-3a)$$

$$\frac{\partial H_y}{\partial z} = i\frac{\omega}{c}\varepsilon E_x, \qquad \frac{\partial H_y}{\partial x} = -i\frac{\omega}{c}\varepsilon E_z, \qquad \left[\frac{\partial E_z}{\partial x} - \frac{\partial E_x}{\partial z}\right] = -i\frac{\omega}{c}H_y. \tag{2-3b}$$

El conjunto (2-3a) involucra únicamente a H_x , H_z y E_y y corresponde al caso de polarización s o TE, mientras que el conjunto (2-3b) involucra E_x , E_z y H_y y corresponde al caso de polarización p o TM. Vemos que estos dos conjuntos de ecuaciones están desacopladas y corresponden a dos modos independientes del sistema, por lo que estos dos casos se pueden tratar por separado.

También vale la pena mencionar que si conocemos el campo E_y , podemos calcular H_z y H_x a partir de las primeras dos ecuaciones de (2-3a). Similarmente, para el caso de polarización p, si conocemos H_y podemos calcular E_x y E_z de las primeras dos ecuaciones de (2-3b). Vemos que el problema, para cada polarización, es de naturaleza escalar y para casos generales, resulta conveniente separar la solución en una combinación lineal de estas dos soluciones.

Sustituyendo las primeras dos ecuaciones del conjunto (2-3a) en la tercera, se obtiene que

$$\left[\frac{\partial^2 E_y}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 E_y}{\partial z^2}\right] + \varepsilon \left(\frac{\omega}{c}\right)^2 E_y = 0.$$
(2-4)

De manera análoga, para polarización p se obtiene que

$$\left[\frac{\partial^2 H_y}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 H_y}{\partial z^2}\right] + \varepsilon \left(\frac{\omega}{c}\right)^2 H_y = 0.$$
(2-5)

Esto muestra que tanto E_y como H_y satisfacen ecuaciones de onda con un número de onda $k = \sqrt{\varepsilon}(\omega/c)$.

2.2. Plasmones polaritones de superficie

Para buscar soluciones a las ecuaciones de Maxwell que correspondan a ondas superficiales, es conveniente proponer una forma de los campos apropiada a la geometría de propagación. El tratamiento presentado aquí, está basado en el capítulo 2 del libro de Maier [1].

Consideramos soluciones del tipo de ondas planas, con propagación a lo largo del eje x y atenuación al alejarnos de la interfaz. Nos concentramos en el caso de polarización p y suponemos que $H_y(x, y, z)$ es de la forma

$$H_y(x, y, z) = H_0 e^{i\mathbf{k}_{\rm inc} \cdot \mathbf{r}},\tag{2-6}$$

donde $\mathbf{k}_{inc} = (k, 0, \alpha)$. El parámetro complejo k representa la constante de propagación y corresponde a la componente de vector de onda \mathbf{k}_{inc} que está en la dirección de propagación.

Utilizando la forma funcional propuesta en la ecuación (2-5), se encuentra que

$$k^2 + \alpha^2 = \varepsilon \left(\frac{\omega}{c}\right)^2,\tag{2-7}$$

de manera que podemos definir

$$\alpha_{\varepsilon}(k) = \sqrt{\varepsilon \left(\frac{\omega}{c}\right)^2 - k^2},\tag{2-8}$$

con $\Re e\{\alpha_{\varepsilon}(k)\} > 0$ e $\Im m\{\alpha_{\varepsilon}(k)\} > 0$. El signo de la raíz cuadrada se escoge por consideraciones físicas, de manera la onda no aumente su amplitud al propagarse.

Con referencia a la figura 2-1, consideramos ahora la interfaz plana entre los medios I y II. Las condiciones de frontera indican que las componentes tangenciales de los campos deben de ser continuas a través de la interfaz; en el caso bajo consideración (polarización p), estos son los campos H_y y E_x . De la primera de las ecuaciones (2-3b) y tomando en cuenta la forma que hemos supuesto para el campo, podemos escribir

$$E_x = \frac{1}{i\frac{\omega}{c}\varepsilon} \frac{\partial H_y}{\partial z} = \frac{\alpha_{\varepsilon}(k)}{\frac{\omega}{c}\varepsilon} H_y.$$
(2-9)

En el medio II, por abajo de la interfaz, tenemos que

$$H_y^{(II)}(x,z) = H_{01} e^{i(k_2 x - \alpha_{II}(k_2)z)}, \qquad (2-10)$$

$$E_x^{(II)}(x,z) = \frac{-\alpha_{II}(k)}{\varepsilon_{II}\omega/c} H_{02} e^{i(k_2 x - \alpha_{II}(k_2)z)}.$$
(2-11)

Por otro lado, por la parte de arriba tenemos

$$H_y^{(1)}(x,z) = H_{01} e^{i(k_I x + \alpha_I(k_1)z)}, \qquad (2-12)$$

$$E_x^{(1)}(x,z) = \frac{\alpha_I(k)}{\varepsilon_I \omega/c} H_{01} e^{i(k_1 x + \alpha_I(k_1)z)}.$$
(2-13)

Es necesario hacer notar que por consideraciones físicas, puesto que estamos buscando soluciones

en forma de ondas superficiales, hemos escogido los signos de los argumentos de las exponenciales de manera que las ondas decaigan al alejarnos de la interfaz.



Figura 2-1: Geometría para la propagación de PPS en una interfaz dieléctrico-metal.

De la continuidad de $H_y(x, z)$ en z = 0, concluimos que $H_{02} = H_{01} = H_0$ y que $k_2 = k_1 = k$. Similarmente, imponiendo ahora la continuidad de $E_x(x, z)$, encontramos que

$$\frac{\alpha_{II}(k)}{\epsilon_{II}} = -\frac{\alpha_I(k)}{\epsilon_I}.$$
(2-14)

Puesto que $\alpha_{II}(k)$ y $\alpha_I(k)$ tienen que ser del mismo signo, para que se cumpla esta ecuación, ϵ_{II} y ϵ_I tienen que ser de signos contrarios; por ejemplo, $\epsilon_{II} < 0$ (un metal) y $\epsilon_I > 0$ (un dieléctrico).

De la ecuación (2-8), podemos escribir

$$\alpha_I^2(k) = \varepsilon_I \left(\frac{\omega}{c}\right)^2 - k^2, \qquad (2-15)$$

$$\alpha_{II}^2(k) = \varepsilon_{II} \left(\frac{\omega}{c}\right)^2 - k^2, \qquad (2-16)$$

Combinando estas dos ecuaciones con la condición (2-14) se encuentra la relación de dispersión para los plasmones polaritones de superficie.

$$k_{sp} = \frac{\omega}{c} \sqrt{\frac{\varepsilon_I \varepsilon_{II}}{\varepsilon_I + \varepsilon_{II}}}.$$
(2-17)

Un análisis análogo para la polarización s lleva a un resultado similar a la ecuación (2-14) pero sin las permitividades. Debido a la imposibilidad de cumplir con tal condición, se concluye que el sistema no soporta ondas superficiales con polarización s.

2.3. Excitación de PPS por medio de rejillas de difracción

Debido a que la parte real del factor de la raíz cuadrada que aparece en la ecuación (2-17) es mayor que 1, la constante de propagación de los PPS k_{sp} siempre es mayor que el número de onda en el dieléctrico. Debido a esto las ondas superficiales no pueden escapar hacia el dieléctrico y se mantienen confinadas en la interfaz. Sin embargo, por eso mismo, tampoco es posible acoplar un haz de luz que se propaga en el dieléctrico PPS, a menos que se utilicen técnicas especiales para hacer coincidir las fases. Entre estas técnicas, las más comunes son el acoplamiento por prisma y por rejilla de difracción. En nuestro caso se utilizó el acoplamiento por rejillas de difracción.

Las rejillas de difracción son superficies o pantallas planas periódicas que, en su interacción con la luz, producen efectos de interferencia constructiva en direcciones bien definidas que se conocen como órdenes de difracción. La ecuación de la rejilla relaciona los ángulos a los que ocurren los órdenes con el ángulo de incidencia, el periodo y la longitud de onda. Para el caso del aire (o el vacío), la ecuación se escribe de la siguiente forma

$$\sin\theta_d = \sin\theta_0 \pm \nu \frac{\lambda}{\Lambda},\tag{2-18}$$

donde θ_0 es el ángulo de de incidencia, θ_d es el ángulo de difracción, Λ es el periodo y $\nu = 0, 1, 2, ...$ es un número entero que representa el orden de difracción. La ecuación representa una condición de interferencia constructiva en la luz reflejada por la superficie. El orden significa el número de longitudes de onda de diferencia en camino recorrido entre la contribución de un surco y el siguiente. Es decir que en el orden cero (dirección especular) la diferencia de camino óptico es de cero, en el orden uno es de una longitud de onda, etc. El orden 0 corresponde al haz reflejado especularmente (como si la rejilla fuera un espejo plano).

2.3.1. Rejillas senoidales

Consideramos ahora una superficie metálica con una corrugación senoidal. El perfil se puede escribir de la forma

$$\zeta(x) = \frac{h}{2} \operatorname{sen}\left(\frac{2\pi}{\Lambda}x\right),\tag{2-19}$$

donde *h* representa la amplitud de la modulación. Debido a la periodicidad, y a la consecuente presencia de los órdenes de difracción, se puede superar la diferencia entre la componente *x* del vector de onda $k = (\omega/c) \sin \theta_0$ y el número de onda de los PPS, k_{sp} . La coincidencia entre las fases se encuentra cuando se cumple la condición

$$k_{sp} = k\sin\theta \pm \nu g, \tag{2-20}$$

donde $g = \frac{2\pi}{\Lambda}$ es el vector recíproco de la rejilla. Vemos que, de acuerdo a esta ecuación, el acoplamiento se puede dar en cualquiera de los órdenes. El tema, se aborda con más detalle en el capítulo 6 del libro de Raether [21].



Figura 2-2: Acoplamiento a un PPS utilizando el orden -1 de una rejilla.

En la figura 2-2, se ilustra el caso de acoplamiento a PPS en el orden -1 por una rejilla sub-longitud de onda. La excitación del plasmón se pone normalmente en evidencia por una disminución del haz reflejado especularmente. Un ejemplo de esto se muestra en la figura 2-3. La gráfica es el resultado de cálculos numéricos descritos en la siguiente sección. Podemos ver que la reflectividad es muy alta en casi todos los ángulos, con excepción de una región muy pequeña $\sim 31.8^{\circ}$. Esto se debe a que la rejilla tiene un periodo más pequeño que la longitud de onda y a incidencia normal no hay órdenes. El acoplamiento a PPS ocurre a un ángulo $\theta_0 \approx 31.8^{\circ}$. Que es donde se observa la disminución de intensidad. Este fenómeno de absorción selectiva en ángulo y longitud de onda es el que da origen a la anomalías de Wood [20], que fueron observadas por primera vez a principios del siglo pasado. Sin embargo, tanto en el orden cero como en los otros ordenes, el acoplamiento al plasmón da origen a una redistribución de la energía en los órdenes que puede incrementar o disminuir su intensidad.



Figura 2-3: Reflectividad de una rejilla senoidal de oro con $h = 20 \text{ nm y } \Lambda = 524 \text{ nm}$, suponiendo una longitud de onda $\lambda = 810 \text{ nm}$.

Como es de esperarse, el proceso inverso, de desacoplamiento del PPS por efectos de difracción en la rejilla, también es posible. En el caso ilustrado en la figura 2-2, la difracción del PPS ocurre en la dirección especular, de manera que esta contribución se superpone e interfiere con el haz reflejado especularmente. El caso de un PPS que interactúa con una rejilla de otro periodo se ilustra en la figura 2-4, en donde se observa que el haz difractado sale a un ángulo θ_d , que es diferente de la dirección especular mostrada en la figura de acoplamiento 2-2.



Figura 2-4: Difracción de un PPS por una rejilla.

2.3.2. Rejillas con doble periodo

Como se explicó en la sección anterior, cuando se acopla luz a PPS por medio de una rejilla, la misma interacción del PPS con la periodicidad que la acopló, la puede difractar en la dirección especular. Con este fenómeno de acoplamiento-desacoplamiento, se puede plantear cómo será la interacción de luz con una rejilla que tenga un perfil con dos periodicidades. Esta rejilla se puede construir como la superposición de dos perfiles senoidales con periodos distintos. Matemáticamente tenemos que

$$\zeta(x) = \frac{h_A}{2} \sin\left(\frac{2\pi}{\Lambda_A}x\right) + \frac{h_A}{2} \sin\left(\frac{2\pi}{\Lambda_B}x\right).$$
(2-21)

Un ejemplo de esto, se muestra en la figura 2-5, en donde se han superpuesto las periodicidades ilustradas en las figuras 2-2 y 2-4.



Figura 2-5: Ilustración de la construcción del perfil de una superficie con dos periodicidades.

A través de la periodicidad de la rejilla A, el haz incidente a un ángulo θ_0 se acopla a PPS a través del orden -1. Se han excitado entonces PPS que se propagan hacia la izquierda. La interacción de estas ondas superficiales con la rejilla B, provoca un haz difractado a un ángulo θ_d , que es diferente de la dirección especular y que puede ser detectado y manipulado por separado. Para ilustrar lo anterior, se presentan algunos cálculos ilustrativos en la figura 2-6. De esto se concluye que es posible utilizar rejillas de doble periodo para generar y diferenciar haces que involucran el acoplamiento y posterior difracción de PPS. De igual manera, es natural pensar en analizar las propiedades de interferencia de estos haces mediante la incidencia de dos haces coherentes en un arreglo simetrico con respecto a la normal de la superficie de la rejilla.





(a) Haz incidente en una rejilla con un período

(b) Haz incidente en una rejilla con dos períodos

Figura 2-6: Calculos del campo total para dos rejillas.

2.4. El método integral

Esta sección trata sobre el método numérico empleado para resolver el problema de la interacción de luz con las rejillas. Dado que se trata de un método conocido en el grupo de trabajo y que se encuentra descrito con mucho detalle en la referencia [22], solo presentamos aquí una descripción breve que permite visualizar el método de solución. La geometría considerada se muestra en la figura 2-7. Se ilumina la superficie con una onda monocromática que se propaga en el plano x - z. Suponemos que el medio de incidencia (I) tiene una permitividad eléctrica $\varepsilon_I(\omega)$ y que la superficie está caracterizada por una función dieléctrica compleja $\varepsilon_{II}(\omega)$.



Figura 2-7: Geometría considerada para el problema electromagnético.

El método se basa en la aplicación del teorema de Green sobre un volumen definido por la superficie y un semicilindro. El campo total en el medio I (ver figura 2-7) se puede escribir de la forma [22]

$$\psi^{I}(\mathbf{r}) = \psi^{I}_{inc}(\mathbf{r}) - \frac{1}{4\pi} \int_{\Sigma} \left[\left(\frac{\partial}{\partial n} G^{I}(\mathbf{r}|\mathbf{R}) \right) \psi^{I}(\mathbf{R}) - G^{I}(\mathbf{r}|\mathbf{R}) \left(\frac{\partial}{\partial n} \psi^{I}(\mathbf{R}) \right) \right] ds,$$

$$= \psi^{I}_{inc}(\mathbf{r}) + \psi^{I}_{sc}(\mathbf{r}).$$
(2-22)

Vemos que el campo total tiene dos contribuciones, una que viene del semicilindro y representa el campo incidente y la otra que representa el campo esparcido por la superficie Σ . Para calcular el campo esparcido es necesario determinar los valores del campo y su derivada normal sobre la superficie, es decir $\psi^{I}(\mathbf{R})$ y $\frac{\partial}{\partial n}\psi^{I}(\mathbf{R})$, donde $\mathbf{R} = (x, 0, \zeta(x))$ representa un vector sobre la superficie. La función $G^{I}(\mathbf{r}|\mathbf{r}')$ represente la función de Green del medio I y es solución de la ecuación diferencial

$$\left[\nabla^2 + \epsilon_I \left(\frac{\omega}{c}\right)^2\right] G^I(\mathbf{r}|\mathbf{r}') = -4\pi\delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}'), \qquad (2-23)$$

que pare el caso de dos dimensiones está dada por

$$G^{I}(\mathbf{r}|\mathbf{r}') = i\pi H_{0}^{(1)} \left[n_{I} \frac{\omega}{c} |\mathbf{r} - \mathbf{r}'| \right], \qquad (2-24)$$

donde $H_0^{(1)}(z)$ representa la función de Hankel de orden cero y primera especie.

La ecuación (2-22) es insuficiente para resolver el problema y es necesario recurrir a una segunda ecuación que resulta de aplicar el teorema de Green por la parte de abajo de la superficie (medio *II*). De esta manera, al hacer tender el punto de observación a la superficie, por la parte de arriba, se derivan dos ecuaciones integrales acopladas para las "funciones fuente", denotadas por $\psi(x) = \psi^I(x, \zeta(z))$ y $\nu(x) = \frac{\partial}{\partial N} \psi^I(x, z) \Big|_{(x, \zeta(x))}$, donde el operador $\partial/\partial N$ representa una derivada normal no normalizada definida por a siguiente expresión:

$$\frac{\partial}{\partial N} = -\zeta'(x)\frac{\partial}{\partial x} + \frac{\partial}{\partial z}.$$
(2-25)

Las ecuaciones integrales acopladas que permiten solucionar el problema se pueden escribir de la siguiente manera ([22]):

$$\psi(x) = \psi_{inc}(x) + \lim_{\epsilon \to \infty} \int_{-\infty}^{\infty} dx' [H_I(x|x')\psi(x') - L_I(x|x')\nu(x')], \qquad (2-26)$$

$$0 = \lim_{\epsilon \to \infty} \frac{1}{4\pi} \int_{-\infty}^{\infty} dx' [H_{II}(x|x')\psi(x') - \gamma L_{II}(x|x')\nu(x')].$$
(2-27)

Aquí,

$$H_{I,II}(x|x') = \frac{i}{4} \frac{\partial}{\partial N'} H_0^{(1)} \left[n_{I,II} \frac{\omega}{c} \xi \right] |_{z' = \zeta(x')}, \tag{2-28}$$

$$L_{I,II}(x|x') = \frac{i}{4} H_0^{(1)} \left[n_{I,II} \frac{\omega}{c} \xi \right] |_{z'=\zeta(x')},$$
(2-29)

donde hemos puesto

$$\xi = [(x - x')^2 + (\zeta(x) - z' + \eta)^2]^{1/2}.$$
(2-30)

En estas ecuaciones el parámetro $\gamma=\epsilon_{II}/\epsilon_I$ para polarización p
 y $\gamma=1$ para polarización s.

La solución numérica de las ecuaciones (2-26) y (2-27) produce las funciones fuente $\psi(x_n)$ y $\nu(x_n)$, con las que es posible calcular, a través de la ecuación (2-26), tanto el campo total como el esparcido dentro del medio I.

Para realizar cálculos en el campo lejano a la superficie, es conveniente representar el campo como una superposición de ondas planas [22].

$$\psi_{sc}(\mathbf{r}) = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{dq}{2\pi} R_{p,s}(q|k) e^{iqx + i\alpha_I(q)\zeta(x)},$$
(2-31)

donde el espectro angular, o amplitud de esparcimiento, está dada por

$$R_{p,s}(q|k) = \frac{i}{2\alpha_I(q)} \int_{-\infty}^{\infty} dx [i(q\zeta'(x) - \alpha_I(q))\psi(x) - \nu(x)] e^{-iqx - i\alpha_I(q)\zeta(x)}.$$
 (2-32)

Finalmente, es necesario introducir el Coeficiente Diferencial de Reflexión (CDR), que representa la fracción de la energía incidente que es esparcida por unidad de ángulo. Se trata, esencialmente, de la intensidad esparcida, normalizada de manera tal que su integral angular representa la potencia óptica esparcida por la superficie. Para el caso de iluminación por una onda plana, el CDR está dado por

$$\left(\frac{\partial R_{p,s}}{\partial \theta_s}\right) = \frac{1}{2\pi L} \frac{\cos^2 \theta_s}{\cos \theta_0} |R(k|q)|^2,$$
(2-33)

donde L corresponde a la longitud de la superficie a lo largo del eje x, θ_0 es el ángulo de incidencia y θ_s es el ángulo de esparcimiento. $R_{p,s}(q|k)$ representa la amplitud de la onda esparcida, alimentada desde un estado con número de onda $k = (w/c) \operatorname{sen} \theta_0$ hasta un estado con número de onda $q = (w/c) \operatorname{sen} \theta_s$.

2.4.1. Aplicación del método integral al caso de rejillas metálicas

En las sección 2.3.1 se presentaron cálculos de reflectividad (figura 2-3) basados en el meetodo numérico aquí descrito. También, en la sección 2.3.2, se presentaron cálculos de campo cercano que ilustran la excitación y posterior difracción de PPS en una superficie con dos componentes de frecuencia.

Para estudiar efectos de interferencia con rejillas de doble período se realizaron también cálculos utilizando uno y dos haces gaussianos . En la figura 2-8, se muestran resultados para una doble rejilla con periodos $\Lambda_1 = 524$ nm y $\Lambda_2 = 794$ nm. Uno de los periodos fue escogido para que se diera el acoplamiento a PPS para incidencia normal, de manera que si se excitan PPS, estos se van a difractar en dirección normal a la superficie. En la figura 2-8 se muestra el caso de iluminación con un solo haz a $\theta_0 = 30^\circ$. El haz se acopló a PPS por Λ_1 y como se observa, fue difractado en dirección normal a la superficie por el periodo Λ_2 .



Figura 2-8: Un haz incidente en una rejilla de doble periodo.

Posteriormente, se considero una situación con dos haces incidiendo simetricamente con respecto a la normal y se realizaron dos cálculos más para observar si ocurría interferencia entre los haces difractados por PPS. Las gráficas se presentan en la figura 2-9. En la figura 2-9a los haces están en fase y debido a la interferencia constructiva, se observa un pico muy alto en $\theta_s = 0$. Esto es evidencia de que los haces están interfiriendo constructivamente y nos muestra que a pesar de pasar por estados plasmonicos, los haces han conservado su coherencia y pueden interferir. Para dar más peso a esta conclusión, en la figura 2-9b consideramos el caso en el que los dos haces incidentes estan fuera de fase. En este caso se observa una disminución considerable de la intensidad en la dirección normal a la superficie. Esto nos indica que hay interferencia destructiva de los haces difractados y refuerza la evidencia obtenida de la figura 2-9a.



(b) Dos haces incidentes fuera de fase.

Figura 2-9: Dos haces incidentes en simetría especular en una rejilla con doble periodicidad.

Estos resultados teóricos nos permitieron avanzar en el proyecto y planificar los experimentos que se presentan en el siguiente capítulo.

Capítulo 3

Fabricación y caracterización de muestras

En este capítulo se presentan los aspectos relacionados con la fabricación y caracterización de rejillas para acoplar y difractar PPS. En la sección 3.1 se presentan detalles del depósito de la fotorresina, la exposición y el depósito de oro. Posteriormente se describe la caracterización por microscopia electrónica, microscopia de fuerza atómica y métodos ópticos.

3.1. Fabricación

Inicialmente se planteó fabricar rejillas de doble período con parámetros similares a los que se utilizaron en el capítulo 3 para los calculos númericos. Sin embargo, con la longitud de onda empleada para la fabricación resultó difícil alcanzar los periodos requeridos. Debido a esto, se decidió cambiar el diseño y, en vez de acoplar a PPS en el orden -1, se fabrico la rejilla para acoplar en el orden +1. El precio que se paga por este cambio es que se tienen más ordenes de difracción en la región de radiación.

3.1.1. Depósito de resina fotosensible

Para cubrir los sustratos con una capa de fotorresina, una vez limpios los sustratos, se ponen cinco gotas de resina fotosensible de tipo microposit s1805 y se hacen girar por 10 s a 4000 rev/min en un *spincoater*. Después de un periodo de reposo, se calientan a 110°C por un hora y se dejan reposar por al menos 4 horas. El proceso descrito se describe esquematicamente en la figura 3-1. Después de esto, las placas están listas para exponerse.



Figura 3-1: Deagrama esquematico que ilustra la perparación de placas cubiertas con fotorresina. a) Se colocan 5 gotas de resina fotosensible, b) Se hace girar la muestra 10 s a 4000 rev/min, c) Se hornea la muestra 1 hr a 110°C.

3.1.2. Litografía por interferencia láser

Cuando dos haces de una misma fuente coinciden sobre una superficie, se observa un fenomeno de interferencia que consiste en un patrón senoidal de franjas brillantes y obscuras como se ilustra en la Figura 3-2.



Figura 3-2: Interferencia de dos haces coherentes.

La intensidad lumínica I_r en cada punto del patrón se puede escribir de la siguiente forma:

$$I_r = I_1 + I_2 + 2\sqrt{I_1 I_2} \times \cos\phi$$
 (3-1)

donde I_1 y I_2 son las intensidades de los dos haces y ϕ es la diferencia de fase entre los haces en ese sitio particular. Dentro del intervalo elemental, la fase puede variar entre 0 y 2π . Si la $\phi = 0$ entonces sera interferencia constructiva y si $\phi = \pi$ será destructiva. Si el frente de onda del láser no tiene distorsiones, se obtienen estructuras lineales con un espaciamiento bien definido. Que depende del ángulo entre los haces y de la longitud de onda

El periodo Λ de esta estructura periódica esta dado por

$$\Lambda = \frac{\lambda}{\sin \theta_1 + \sin \theta_2},\tag{3-2}$$

donde λ es la longitud de onda del láser y los ángulos θ_1 y θ_2 son los ángulos de incidencia, definidos como los ángulos entre la dirección de incidencia y la normal a la superficie expuesta (ver la figura 3-2).



Figura 3-3: Arreglo para el interferómetro del espejo de Lloyd.

Para exponer las muestras se utilizó un interferometro de Lloyd. Este interferómetro está compuesto por un láser con una longitud de coherencia apropiada (al menos varios milimetros), una optica de expansión y un espejo plano. El haz del láser se hace pasar un filtro espacial que expande el haz para iluminar el espejo y el portamuestras, como se muestra en la figura 3-3. El espejo es colocado de manera perpendicular al sustrato para generar un haz reflejado, que interfiere con la luz que incide directamente en la placa de fotorresina. El sustrato y el espejo están situados sobre una mesa rotatoria, con lo que se puede cambiar fácilmente el ángulo de incidencia θ de todo el sistema. El filtro espacial está compuesto de un lente que hace diverger el haz y pequeño orificio para limpiar las imperfecciones del haz y rechazar la luz esparcida. Este filtro ésta ubicado en el camino óptico del haz y el centro del haz está alineado con la intersección del espejo y el sustrato. Esto permite que el haz gaussiano este distribuido simétricamente sobre el sustrato y el espejo, haciendo que la intensidad I_1 sea aproximadamente igual a la I_2 .

El arreglo de un espejo perpendicular al sustrato es interesante desde un punto de vista práctico pues, independientemente de la dirección de iluminación sobre el arreglo, para rayos paralelos, los ángulos θ_1 y θ_2 resultan ser iguales (ver figura 3-4).



Figura 3-4: Diagrama esquemático que muestra las contribuciones a la amplitud compleja sobre el sustrato en el arreglo del interferometro de Lloyd. Si los rayos son paralelos y el espejo es perpendicular al sustrato, $\theta_1 = \theta_2 = \theta$.

Debido a la curvatura del frente de onda del haz utilizado (ver figura 3-3), cerca de la intersección del espejo y el sustrato los ángulos de incidencia θ_1 y θ_2 son iguales. Pero al alejarse del centro los ángulos θ_1 y θ_2 dejan de ser iguales, por lo que el periodo del patrón de interferencia se ve modificado, introduciendo lo que podemos llamar un .^{er}ror". La difracción máxima entre los ángulos depende del ángulo que subtiende el arreglo del interferómetro, visto

desde la fuente puntual. Se puede ver que

$$\alpha = |\theta_1 - \theta_2|. \tag{3-3}$$

Para calcular el error en el periodo se utiliza la identidad de una suma de senos para reescribir la ecuación 3-2 como

$$\Lambda = \frac{\lambda}{2\sin\left(\frac{\theta_1 + \theta_2}{2}\right)\cos\left(\frac{\theta_1 - \theta_2}{2}\right)}.$$
(3-4)

Si los ángulos son iguales o muy cercanos podemos llegar a la siguiente expresión

$$\Lambda = \frac{\lambda}{2\sin\theta},\tag{3-5}$$

donde θ es el ángulo entre el plano del espejo y la dirección de incidencia. El error (ϵ) en la determinación del periodo con base en la expresión 3-5 tiene la siguiente forma

$$\epsilon = 100 \left(1 - \frac{1}{\cos\left(\alpha/2\right)} \right) \%$$
(3-6)

El interferómetro de espejo de Lloyd es considerado como un "interferómetro de un solo haz". Como el espejo crea el haz reflejado, son las diferencias en el camino óptico entre la luz reflejada en el espejo y la que llega directamente al sustrato dan lugar a defectos de interferencia [23].

El láser que se utilizó para para la exposición de los sustratos fue un láser de Argón multilínea, del cual se aisló la linea de $\lambda = 514$ nm utilizando una rejilla de difracción.

Para el grabado de rejillas con doble periodicidad, se realizó una doble exposición, cambiando el ángulo θ del interferómetro de Lloyd como se muestra en la figura 3-5. Los ángulos requeridos fueron calculados con base en la ecuación 3-5.

Debido a la dificultad de controlar el ángulo θ en el interferometro, buscamos fabricar rejillas con periodos entre 700 nm y 1600 nm. El tiempo de exposición fue variado de 15-25 min.

Después del grabado de ambos periodos, los sustratos se sometieron al proceso de revelado utilizando el revelador de resina fotosensible Microposit Developer por aproximadamente 5 min. Inmediatamente después, los sustratos se lavaron con agua y se secaron utilizando una pistola de aire.



Figura 3-5: Cambio de ángulo del sistema para generar dos periodos en una rejilla.

Las rejillas fueron sometidas a la caracterización descrita en la sección 3.3.1 y se eligieron las rejillas que presentaban la mejor visbilidad de los ordenes difractados por la doble periodicidad.

Posteriormente, sobre las rejillas seleccionadas se depositó una película delgada de oro de aproximadamente 100 nm en cada rejilla mediante la técnica de pulverización catódica.

3.2. Caracterización

Las rejillas se caracterizaron para estimar sus periodos y profundidades utilizando varias técnicas. De una inspección rápida por el método de difracción, se seleccionó una rejilla que tenía buena eficiencia de didracción con los dos periodos. Se trata de la rejilla con etiqueta G2. A continuación, se describe la caracterización que hicimos de esa rejilla

3.2.1. microscopia electrónica de barrido (SEM)

Utilizando un SEM Hitachi SU3500 del departamento de óptica del CICESE, se tomaron micrografías de varias áreas de la rejilla de doble periodo. Este análisis se realizó con el objetivo de evaluar la homogeneidad de la rejilla y tratar de medir sus periodos.

En la figura 3-6 podemos observar un mapa de una región pequeña de la muestra. Esta

micrografía se tomó utilizando electrones retrodispersados (BSE)



Figura 3-6: Imagen SEM de BSE con medidas de una zona de la rejilla.

De acuerdo con las medidas que se indican en esta micrografía, el periodo predominante es de 1000 nm. Sin embargo, hay una zona en donde se observa un período de 1200 nm. la estimación de periodos se realizó con el procesador de imágenes incluido en el SEM.

3.2.2. Microscopía de fuerza atómica (AFM)



Figura 3-7: Imagen de AFM visualizada en Gwyddion.

Utilizando un AFM Park System modelo XE-70 del laboratorio de nanocaracterización del CNyN-UNAM se tomaron diferentes imágenes de la rejilla para obtener un perfil de la superficie, que se visualizo utilizando el software gratuito *Gwyddion*. El software también se utilizó para estimar la amplitud y el periodo de la rejilla. Un ejemplo de las imágenes obtenidas se muestra en a figura 3-7.



Figura 3-8: Imagén 3D de AFM de la rejilla con doble periodicidad.

Utilizando herramientas del software se obtuvieron imágenes 3D de la rejilla, como se muestra en la figura 3-8. Esta imagén tridimensional de la rejilla, permite visualizar muy bien la forma del perfil de la rejilla y concuerda con la expectativa de que es de forma senoidal. Posteriormente, utilizando herramientas del software Gwyddion se obtuvieron perfiles unidimensionales de diferentes zonas de la rejilla, como el que se muestra en la figura 3-9.



Figura 3-9: Perfil de la rejilla con doble periodicidad.

Utilizando el perfil anterior y cinco perfiles seleccionados al azar, se midieron amplitudes que variaban entre 60 y 100 nm, con un promedio de de 90 nm y el periodo predominante en todos los perfiles fue de aproximadamente 1000 nm. No se encontró un segundo periodo como en las micrografías de SEM y esto puede ser debido a que la rejilla tenía zonas tanto de un periodo como de dos periodos y es posible que el periodo de 1200 nm no haya estado en las micrografías obtenidas.

3.3. Caracterización óptica

Para reforzar los análisis de microscopía se utilizaron técnicas ópticas para la medición de los periodos y amplitudes de las rejillas. También, como vimos en el capítulo 2, podemos analizar la interacción de luz con cada periodo de manera independiente.

3.3.1. Estimación del período

Para la medición del periodo de las rejillas se utilizó un método sencillo en el que se hace incidir un haz de un láser rojo ($\lambda = 633$ nm) sobre la muestra como se muestra en la figura 3-10.La idea es estimar el periodo midiendo la posición ángular de los órdenes de difracción. De la posición de los ordenes en la pantalla y conceptos de geometría básica se puede obtener el ángulo de difracción de cada orden y, por medio de la ecuación 3-5, el periodo de la rejilla.



Figura 3-10: Arreglo para la medición de la distancia entre ordenes de difracción.

La medición de los periodos utilizando el arreglo propuesto en la figura 3-10 y sustiyendo los valores en la ecuación 3-5 nos indicó la presencia de un periodo de 1000 nm y otro menos visible de 1200 nm. Este resultado nos confirma las mediciones de SEM en cuanto al periodo de 1000 nm y nos confirma la presencia de otro periodo de 1200 nm.

3.3.2. Estimación de la amplitud



Figura 3-11: Arreglo para la medición de intensidades de los órdenes de difracción.

Si el perfil de la rejilla es senoidal es posible estimar la amplitud de las oscilaciones a través de la eficiencia de difracción en cada orden. Para esto suponemos que el perfil de la superficie esta descrito por la ecuación 2-19, y empleamos la aproximación de la pantalla delgada de fase [24, 25]. Para relacionar las alturas del perfil con las variaciones de fase que adquiere el campo reflejado (o transmitido). De acuerdo a este modelo la transmitancia y la reflectancia de la rejilla son de la forma $e^{i\phi(x)}$, donde

$$\phi(x) = \frac{\phi_m}{2} \operatorname{sen}\left(\frac{2\pi}{\Lambda}x\right) \tag{3-7}$$

у

$$\phi_m = \begin{cases} k(n-1)h_m & \text{ en transmisión,} \\ k2h_m & \text{ en reflexión.} \end{cases}$$
(3-8)

Aquí, $k = 2\pi/\lambda$ y n es el índice de refracción del material del que esta hecho la rejilla.

Las eficiencias de difracción de una rejilla de fase senoidal estan dadas por [26]

$$\mathcal{E}_0 = \frac{I^{(0)}}{I_0} = J_0^2 \left(\frac{\phi_m}{2}\right)$$
(3-9)

$$\mathcal{E}_{\pm 1} = \frac{I^{(\pm 1)}}{I_0} = J_1^2 \left(\frac{\phi_m}{2}\right) \tag{3-10}$$

Para los ordenes 0 y ±1, Aquí I_0 es la intensidad incidente, $I^{(i)}$ es la intensidad en el orden *i* y J_i es la función de Bessel de primer tipo de orden *i*.

Entonces, si se mide la intensidad de los órdenes de difracción y se invierten los datos con los cuadrados de las funciones Bessel, se puede estimar la amplitud de la rejilla .

Con esto en mente, se realizaron cinco mediciones de intensidad para cada orden en reflexión con un arreglo como se muestra en la figura 3-11. Se tiene que tomar en cuanta que los valores medidos son de voltaje pero como finalmente los valores son normalizados, no es necesario realizar ninguna conversión. Los resultados obtenidos se muestran en la tabla 3-1.Denotamos por $I_A^{\pm 1}$ a la intensidad del orden ± 1 debido a la compontente A de la rejilla y por $I_B^{\pm 1}$ a la intensidad debida a la componente B. La componente A tiene un periodo de Λ_A =1000 nm y para la componente B, Λ_B =1200 nm.

No. realización	$I^{(0)}$	$I_A^{(+1)}$	$I_A^{(-1)}$	$I_B^{(+1)}$	$I_B^{(-1)}$
1	3.574	1.494	1.502	0.013	0.012
2	3.546	1.474	1.483	0.013	0.013
3	3.612	1.209	1.219	0.012	0.010
4	4.023	1.264	1.201	0.014	0.012
5	4.043	1.250	1.249	0.012	0.016
Promedio	3.760	1.338	1.331	0.013	0.013

Tabla 3-1: Valores de voltaje medidos para cada uno de los órdenes de difracción.

Con los valores promedio de la tabla se estimaron las eficiencias de los ordenes de difracción, que se muestran en la tabla 3-2.

\mathcal{E}_0	\mathcal{E}_{+1A}	\mathcal{E}_{-1A}	\mathcal{E}_{-1B}	\mathcal{E}_{+1B}
0.5790	0.2061	0.2049	0.0019	0.0020

Tabla 3-2: Valores de la eficiencia de difracción para cada orden.

Utilizando las ecuaciones 3-9 y 3-10 se obtuvieron una amplitud $h_A = 100$ nm para la componente A y una $h_B = 12$ nm para la componente B

Los valores obtenidos de la caracterización (periodo y amplitud) son importantes para poder realizar simulaciones que se apeguen a los experimentos y poder comparar los resultados. Estos resultados se describirán en el siguiente capítulo.

Capítulo 4

Resultados con las muestras fabricadas

En este capítulo, construimos un modelo númerico con los parametros estimados de las muestras fabricadas para caluclar, con base en el metodo integral descrito, la difracción de luz por rejillas modelo. La situación es diferente a la descrita en el capítulo 2, pues en este caso, los periodos dan lugar a la presencia de varios ordenes propagantes. Se presenta cálculos de campo lejano y, para visualizar mejor la situación física, se incluyen algunos de campo cercano. Para esto, supusimos que la rejilla era de oro y que la longitud de onda $\lambda = 810$ nm.

Posteriormente, presentamos mediciones de esparcimiento y difracción con las muestras fabricadas. La comparación entre los resultados experimentales y numéricos da un acuerdo razonablemente bueno y, aunque la eficiencia es baja, muestra que es posible generar haces que provienen de la difracción de PPS utilizando los métodos descritos en esta tesis.

4.1. Calculos con rejillas modelo.

Para los cálculos adoptamos los parámetros estimados y un perfil cuya forma funcional esta descrito por la ecuación 2-19. Los parámetros utilizados son:

 $\Lambda_A = 1000 \text{nm}, \qquad h_A = 100 \text{nm}$

 $\Lambda_B = 1200$ nm, $h_B = 12$ nm



En la figura 4-1, se muestra un perfil generado numéricamente utilizando estos parámetros.

Figura 4-1: Superficie tratada en los cálculos computacionales.

Los ángulos de incidencia a los cuales ocurre un acoplamiento de PPS y el ángulo de difracción al que ocurre la difracción se pueden calcular de la ecuación 2-20. Estimamos, por ejemplo, que para tener acoplamiento con la componente A en el orden +1, se requiere un ángulo de incidencia de $\theta_0 = 12^\circ$ y que la difracción de los PPS por la componente B ocurre a $\theta_s = 20^\circ$

4.1.1. Campo lejano

En la figura 4-2 presentamos cálculos rigurosos de la difracción por la rejilla para tres ángulos de incidencia, que se escogieron como el ángulo de acoplamiento ($\theta_0 = 12^\circ$) y los otros separados por 2° hacia arriba y hacia abajo.

En la figura 4-2a se observa como un orden se torna evanescente conforme el ángulo de incidencia se acerca a 12°. Al llegar a este ángulo (4-2b) el acoplamiento con el PPS provoca una disminución de la intensidad del haz reflejado en el orden 0. Aunque con un bajo coeficiente de reflexión, se puede notar la aparición de un haz completamente nuevo a aproximadamente 20°, que es donde esperabamos su aparición. Por otro lado, en la figura 4-2c se observa que después de los 12° ya no hay acoplamiento ni difracción de PPS.

Para visualizar mejor el fenómeno, en la figura 4-3 se presentan mapas que permiten dar un

seguimiento de la intensidad y trayectoria de los órdenes.



Figura 4-2: CDR a diferentes ángulos de incidencia alrededor del ángulo de acoplamiento de PPS

En estos mapas, se tiene en el vertical es el ángulo de incidencia θ_0 y en el horizontal es el ángulo de esparcimiento θ_s . El color indica la magnitud del CDR en cada punto de la gráfica. Las zonas de colo rojo o azul claro sobre el azul obscuro son los diferentes ordenes de difracción, donde el más intenso es el orden 0 o de reflexion. En cuanto al detalle que desaparece en la esquina derecha es poque a cierto ángulo de incidencia comienza a decaer en una onda evanescente.

La figura 4-3a, que corresponde a la polarización s, muestra la interacción de un haz con la rejilla de doble periodo. Como se aprecia en la figura parece no haber cambio aparente en la continuidad de los órdenes y al cambiar θ_0 . Esto es lo esperado porque en polarización s no existen PPS.



(b) Polarización p.

Figura 4-3: CDR en función del ángulo de incidencia y ángulo de difracción.

En cambio, en la figura 4-3b se observa claramente el acoplamiento a plasmón en $\theta_0 = 12^{\circ}$ y en donde los dos órdenes disminuyen en intensidad. Por otro lado, para ese ángulo de incidencia aparece, aunque con baja eficiencia, un haz difractado de PPS a un ángulo $\theta_s = 20^{\circ}$. Los cálculos analíticos indican que el acoplamiento es por la rejilla de 1000 nm y la difracción de PPS es por la rejilla de 1200 nm.

4.1.2. Campo cercano



Figura 4-4: Campo esparcido para ángulos de incidencia alrededor del ángulo de acoplamiento con el PPS.

Para ayudar a la visualización de los resultados, se realizaron calculos del campo cercano de la interacción de un haz con la rejilla de doble periodo. En la figura 4-4 se muestra una secuencia de los mapas de campo cercano al cambiar el ángulo de incidencia entre $\theta_0 = 8^\circ$ y 16°. Estas graficas permiten apreciar con mayor detalle la disminución de la intensidad del haz reflejado cerca del ángulo de acoplamiento del PPS y, en específico en la figura 4-4c, la aparición de la difracción del PPS. También se puede apreciar que a ese ángulo de incidencia se tiene un mayor acoplamiento a PPS.

Los cálculos anteriores indican que la muestra fabricada puede ser apropiada para demostrar este efecto de la difracción de PPS por uno de los componentes.

4.2. Esparcímetro

La muestra fabricada fue estudiada con un esparcímetro para determinar la distribución angular de la luz esparcida y comprararla con las simulaciones realizadas. El esparcímetro es un instrumento que permite hacer mediciones angulares de luz esparcida.



Figura 4-5: Diagrama esquemático del arreglo experimental.

El instrumento utilizado fue diseñado y construido en el laboratorio de plasmónica del CICESE. Un diagrama esquemático del arreglo experimental se muestra en la figura 4-5.



Figura 4-6: Mediciones de la luz esparcida a incidencia normal.

El láser utilizado fue un diodo láser de $\lambda = 810$ nm. El haz fue dirigido hacía la muestra con reflexiones de un persicopio y la luz difractada por la rejilla es colectada por un detector. Dado que los haces difractados pueden tener intensidades muy distintas, fue necesario utilizar atenuadores para evitar saturar el detector. La intensidad difractada fue muestreada con pasos de 1°.



Figura 4-7: Intensidad de la distribución angular de luz esparcida para diferentes ángulos.

En la figura 4-6, se muestran las mediciones correspondientes a incidencia normal. En la grafica se aprecian el orden 0, además de otros cuatro órdenes que corresponden a los órdenes 1 y -1 de los componentes de la rejilla. La eficiencia de difracción de los órdenes del periodo de 1200 nm es mucho menor que la de los órdenes del periodo de 1000 nm. Esto es de esperarse debido a la diferencia de amplitud de los componentes.

Posteriormente se realizaron las mediciones de la luz esparcida en ángulos cercanos al ángulo

de acoplamiento de PPS. En la figura 4-7 se puede observar el cambio de la luz esparcida de $\theta_0 = 10^\circ$ al ángulo de acoplamiento $\theta_0 = 12^\circ$ y posteriormente a un ángulo de $\theta_0 = 14^\circ$.

Si comparamos estos resultados con los teóricos podemos observar un comportamiento muy similar con pequeños cambios relacionados con el ancho del haz y la intensidad de algunos órdenes, pero la aparición del haz difractado debido al acoplamiento de PPS es evidente.

Capítulo 5

Resumen y Conclusiones

En este trabajo de tesis, se ha presentado un estudio del acoplamiento y posterior difracción de PPS utilizando muestras especialmente diseñadas que contienen una doble periodicidad. El problema fue estudiado numéricamente utilizando un método riguroso basado en la solución de una par de ecuaciones integrales para encontrar las fuentes del campo difractado. Para observar estos efectos, se fabricaron rejillas por litografía de interferencia y se caracterizaron con métodos ópticos, de microscopía electrónica y de fuerza atómica.

De los resultados numéricos se concluye que las superficies propuestas producen los efectos esperados y que es posible obtener haces aislados que, durante su propagación, involucraron el paso por PPS. También se mostró que es posible producir interferencia entre dos haces de este tipo. Los experimentos de difracción con las muestras fabricadas corroboran la presencia estos haces producidos por efectos de doble difracción y muestran un buen acuerdo con los resultados numéricos.

El estudio realizado fue motivado por preguntas fundamentales sobre la física de los PPS, como sus propiedades de coherencia y, a nivel cuántico, en qué medida es posible hablar de plasmones entrelazados. Aunque en esta tesis no se ha dado respuesta a las preguntas que la motivaron, sí podemos concluir que el tipo de rejillas propuesto constituye una herramienta interesante para tratar de hacerlo. Las perspectivas son amplias en ese sentido y el grupo de trabajo planea continuar con este tipo de investigaciones. Finalmente, vale la pena mencionar que el estudio con las superficies que producen efectos de doble difracción e involucran la excitación de PPS reviste cierta novedad, pues no hemos encontrado en la literatura estudios similares.

Bibliografía

- [1] Maier, S. A. (2007). Plasmonics: fundamentals and applications. Springer.
- [2] Novotny, L., & Hecht, B. (2012). Principles of nano-optics. Cambridge University Press.
- [3] Pitarke, J. M., Silkin, V. M., Chulkov, E. V., & Echenique, P. M. (2006). "Theory of surface plasmons and surface-plasmon polaritons." Reports on Progress in Physics, 70, 1.
- [4] Zayats, A. V., Smolyaninov, I. I., & Maradudin, A. A. (2005). "Nano-optics of surface plasmon polaritons." Physics Reports, 408, 131-314.
- [5] Heber, J. (2009). "Surfing the wave." Nature, **461**, 720-722.
- [6] Osbay, Z. (2006). "Plasmonics: Merging Photonics and Electronics at Nanoscale Dimensions," Science, **311**, 189-193.
- [7] Atwater, H. A. (2007). "The Promise of Plasmonics," Scientific American, 296, 56-63.
- [8] Gisin, N., & Thew, R. (2007). "Quantum Information." Nat. Photon., 1, 165.
- [9] Einstein, A., Podolsky, B., & Rosen, N., (1935). "Can Quantum-Mechanical Description of Physical Reality Be Considered Complete?" Phys. Rev., 47, 777.
- [10] Zeilinger, A. (2017). "Light for the quantum. Entangled photons and their applications: a very personal perspective," Physica Scripta, 92, 072501.
- [11] Fakonas, J. S., Lee, H., Kelaita, Y. A. & Atwater, H. A. (2014). "Two-plasmon quantum interference," Nat. Photon. 8, 317.

- [12] Fakonas, J. S., Mitskovets, A. & Atwater, H. A. (2015). "Path entanglement of surface plasmons" New J. Phys. 17, 023002.
- [13] Kroo, N., Czitrovszky, A., Nagy, A., Oszetzky, D. & Walther, H. (2006). "Surface plasmons and photon statistics," J. Mod. Opt. 53, 2309-2314.
- [14] Varró, S., Kroó, N., Oszetzky, D., Nagy A., & Czitrovszky, A. (2011). "Hanbury Brown and Twiss type correlations with surface plasmon light," J. Mod. Opt. 58, 2049-2059.
- [15] Fujii, G., Fukuda D. & Inoue, S. (2014). "Direct observation of bosonic quantum interference of surface plasmon polaritons using photon-number-resolving detectors," Phys. Rev. B 90, 085430.
- [16] West, C. S. & O'Donnell, K. A. (1995). "Observations of backscattering enhancement from polaritons on a rough metal surface," J. Opt. Soc. Am. A 12, 390-397.
- [17] Maradudin, A. A., McGurn, A. R. & 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, 2500-2506.
- [18] Mendoza-Suarez, A. & Méndez, E. R. (1997). "Light scattering by a reentrant fractal surface" Appl. Opt. 36, 3521-3531.
- [19] Altewischer, E., Van Exter, M. P. & Woerdman, J. P. (2002). "Plasmon-assisted transmission of entangled photons," Nature, 418, 304306.
- [20] Wood, R. W. (1902). "On a remarkable case of uneven distribution of light in a diffraction grating spectrum" Philosophical Magazine Series 6, 4, 396-402.
- [21] Raether, H. (1988). Surface plasmons on smooth an rough surfaces and on gratings. Springer-Verlag.
- [22] Maradudin, A. A., Michel, T., McGurn, A. R. & Méndez, E. R. (1990). "Enhanced backscattering of light from a random grating," Ann. Phys (NY) 203, 255-307.

- [23] Wolferen, H. & Abelmann L. (2011). "Laser Interference Lithography" In Litography: Principles, Processes and Materials, Nova Science Publishers.
- [24] Welford, W. T. (1977). "Optical estimation of statistics of surface roughness from light scattering measurements." Opt. Quantum Elect. 9. 269–387.
- [25] Gu, Z. H., Escamilla, H. M., Méndez, E. R., Maradudin, A. A., Lu, J. Q., Michel, T., & Nietovesperinas, M. (1992). "Interaction of two optical beams at a symmetric random surface." Appl. Opt. **31(27)**. 5878–5889.
- [26] Goodman, J. W. (2017). Introduction to Fourier Optics. 4a edición. W. H. Freeman.