



UNIVERSIDAD NACIONAL AUTÓNOMA DE MÉXICO
POSGRADO EN CIENCIAS (FÍSICA)

GENERACIÓN DE SEGUNDO ARMÓNICO CUADRUPOLAR POR HACES
HERMITE-GAUSS Y LAGUERRE-GAUSS

TESIS
QUE PARA OPTAR POR EL GRADO DE:
MAESTRO EN CIENCIAS FÍSICO.

PRESENTA:
MIGUEL ÁNGEL GONZÁLEZ MANDUJANO

DIRECTOR DE TESIS
Dr. JESÚS A. MAYTORENA CÓRDOVA.
CNyN-UNAM.

COMITE TUTORAL
DR. CLAUDIO ISMAEL VALENCIA YAVES.
UABC

DRA. CATALINA LÓPEZ BASTIDAS.
CNyN-UNAM

MÉXICO, B. C. ABRIL 2014



Universidad Nacional
Autónoma de México

Dirección General de Bibliotecas de la UNAM

Biblioteca Central



UNAM – Dirección General de Bibliotecas
Tesis Digitales
Restricciones de uso

DERECHOS RESERVADOS ©
PROHIBIDA SU REPRODUCCIÓN TOTAL O PARCIAL

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

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

A mis padres Ciro y Andrea.

Agradecimientos.

Primeramente quiero agradecer a mi familia por su apoyo y paciencia durante este largo periodo. A Cynthia por su cariño y comprensión. A mis amigos y a los profesores del posgrado de ciencias física.

A mi comité tutorial Claudio Valencia, Catalina López y especialmente a mi tutor Jesús Maytorena.

También quiero agradecer a Conacyt y al proyecto DGAPA-UNAM No. IN114210 por el apoyo parcial de este trabajo de investigación.

Resumen.

En el presente trabajo se estudia la generación óptica de segundo armónico por dispersión de una placa delgada de material centrosimétrico y homogéneo cuando es iluminado con haces Gaussianos de orden superior. Se considera que la polarización inducida de segundo orden es del tipo cuadrupolar $(\mathbf{E} \cdot \nabla)\mathbf{E}$, la cual depende de las inhomogeneidades del campo eléctrico fundamental \mathbf{E} . Se calculan los patrones angulares de radiación del segundo armónico para distintos casos de iluminación con haces de estructura espacial transversal y polarización arbitraria. En particular, se considera que el haz consiste en modos Hermite-Gauss (HG) o modos Laguerre-Gauss (LG). Se analizan combinaciones de modos HG llamadas 'modos donas' de polarización radial o azimutal y modos helicoidales LG con momento angular orbital óptico de polarización lineal o circular. Se encontró que la generación de segundo armónico (GSA) del tipo cuadrupolar depende sensiblemente de la estructura transversal y de la polarización del campo fundamental. La respuesta a $\nabla\mathbf{E}$ introduce un factor $\mathbf{E}(\mathbf{E} \cdot \mathbf{K})$ en la componente de Fourier de la amplitud de dispersión en el segundo armónico, ausente en el caso dipolar. Este nuevo factor puede dar origen a líneas o anillos de intensidad nula en los patrones de radiación del segundo armónico, cambios en la polarización o un cambio en la fase azimutal en la radiación. Para haces con polarización circular ($\sigma = \pm 1$) y con un frente de onda helicoidal de momento angular orbital l_ω , se encontró que el haz generado en el segundo armónico adquiere una fase helicoidal $l_{2\omega} = 2l_\omega + \sigma$, en contraste con el caso de segundo armónico dipolar en el que el momento angular orbital se dobla. Estas características

podrían ser empleadas para identificar procesos de GSA del tipo cuadrupolar o producir un haz en 2ω de patrón angular y polarización deseada. En particular, se podría utilizar la inhomogeneidad de los nuevos haces y los cambios de polarización en áreas como nano-óptica, fotónica y confinamiento de partículas.

Summary.

In this thesis we study the optical second-harmonic generation by scattering from a homogeneous centrosymmetric thin composite material when is illuminated with higher-order Gaussian beams. It is considered that the induced polarization is of the second order quadrupolar type $(\mathbf{E} \cdot \nabla)\mathbf{E}$, which depends on the inhomogeneity of the incident electric field \mathbf{E} . We calculate the angular patterns of second-harmonic radiation to different cases of illumination with transverse spatial structure and arbitrary polarization beams. In particular, it is considered that the beam consist of Hermite-Gaussian modes (HG) or Laguerre-Gaussian modes (LG). We analyze combinations of HG modes called doughnut modes with radial or azimuthal polarization and LG helical modes with optical orbital angular momentum of linear or circular polarization. We found that the quadrupole type second harmonic generation (SHG) depends sensitively on the transverse structure and polarization of the fundamental field. The responds to $\nabla\mathbf{E}$ introduces a factor $\mathbf{E}(\mathbf{E} \cdot \mathbf{K})$ for the Fourier component of the scattering amplitude in the second harmonic absent in the dipole case. This new factor may give rise to zero lines intensity or rings patterns of second-harmonic radiation, changes in polarization or a change in the azimuthal phase radiation. For circularly polarized beams ($\sigma = \pm 1$) and a helical wavefront orbital angular momentum l_ω , it was found that the beam generated at the second harmonic acquires a helical phase $l_{2\omega} = 2l_\omega + \sigma$, in contrast to the case of dipolar second harmonic which the orbital angular momentum doubles. These characteristics could be used to identify SHG processes quadrupole type or produce a beam in 2ω with angular

and polarization pattern desired. In particular, one could use the inhomogeneity of the new beams and the polarization changes in areas such as nano-optics, photonics and trapping particle.

Índice general

| | | |
|----------|---|-----------|
| 1 | Introducción. | 2 |
| 2 | Generación óptica de segundo armónico. | 6 |
| 2.1 | Óptica No-lineal | 7 |
| 2.2 | Ecuación de onda para medios no lineales. | 9 |
| 2.3 | Generación de segundo armónico (GSA) | 11 |
| 2.4 | GSA en superficies planas | 11 |
| 2.5 | GSA en partículas centrosimétricas | 13 |
| 3 | Esparcimiento óptico no lineal por nanopartículas. | 14 |
| 3.1 | Segundo armónico en una esfera de material centrosimétrico | 15 |
| 3.2 | Nanocristales de Si en una matriz de SiO ₂ | 17 |
| 3.3 | Segundo armónico en una película de nanopartículas esféricas. | 20 |
| 4 | Haces Gaussianos. | 25 |
| 4.1 | Ecuación de Helmholtz paraxial | 26 |
| 4.1.1 | Haz Gaussiano. | 28 |
| 4.1.2 | Haz Hermite-Gauss. | 29 |
| 4.1.3 | Haz Laguerre-Gauss. | 32 |
| 5 | GSA cuadrupolar por haces Gaussianos. | 36 |

| | | |
|----------|---|-----------|
| 5.1 | Teoría. | 37 |
| 5.2 | Excitación por haces Hermite-Gauss. | 40 |
| 5.2.1 | Modo Hermite-Gauss | 40 |
| 5.2.2 | Combinación de dos modos Hermite-Gauss | 41 |
| 5.3 | Excitación por haces Laguerre-Gauss. | 42 |
| 5.3.1 | Modo Laguerre-Gauss. | 42 |
| 5.3.2 | Combinación de dos modos Laguerre-Gauss. | 43 |
| 6 | Resultados. | 45 |
| 6.1 | Radiación por un haz Gaussiano. | 45 |
| 6.2 | Radiación por haces Hermite-Gauss. | 47 |
| 6.2.1 | Radiación debida a los tres modos dona. | 49 |
| 6.2.2 | Radiación por una combinación asimétrica. | 51 |
| 6.3 | Radiación por haces Laguerre-Gauss | 53 |
| 7 | Conclusiones. | 55 |
| A | Identidades empleadas. | 61 |
| B | Derivación de la ecuación 5.16. | 63 |
| C | Derivación de la ecuación 5.31. | 65 |

Capítulo 1

Introducción.

La invención del láser hace más de 50 años permitió la posibilidad de generar luz coherente de muy alta intensidad [1]. Una de sus principales aplicaciones ha sido estudiar los procesos en los que ocurren modificaciones de las propiedades ópticas de un material debido a la presencia de luz o radiación electromagnética muy intensa [2, 3]. Estos procesos constituyen el área de estudio de la *óptica no lineal* que inició a partir del descubrimiento del fenómeno óptico llamado *generación de segundo armónico* (GSA). Este último consiste en el doblamiento de la frecuencia ω de emisión de un láser debido a su interacción con un medio [4].

La GSA se utiliza como una prueba espectroscópica de superficies ya que en los medios que poseen simetría de inversión espacial (centrosimétricos), la señal de radiación con frecuencia doblada es fuertemente suprimida en el interior pero no en la superficie e interfaces donde se rompe la simetría [2, 3, 5]. Muchos estudios han hecho uso de esta regla de selección general para la investigación de superficies de medios centrosimétricos [5–7].

Aunque la mayor parte de los estudios se han centrado en superficies e interfases planas, otras geometrías también han sido exploradas como es el caso de las partículas esféricas. Por ejemplo, se utilizó la GSA en suspensiones coloidales centrosimétricas, partículas cuyo radio a es del orden de la longitud de onda λ ($a \sim \lambda$). En éstas se demostró la sensibilidad de este

proceso no lineal a la superficie de las micropartículas [8,9]. Este descubrimiento planteó la necesidad de una mayor investigación teórica y experimental sobre las propiedades ópticas de partículas ya que anteriormente se pensaba que la GSA por esferas era nula debido a la centrosimetría.

Recientemente se empleó la señal del segundo armónico en el estudio de la superficie de nanopartículas esféricas, específicamente, en nanocristales de Si (NC-Si). Estos últimos son de suma importancia por sus múltiples aplicaciones como memorias no volátiles y dispositivos emisores de luz [10,11]. Por esta razón Y. Jiang et al. utilizaron la GSA en la investigación de películas compuestas NC-Si embebidos en una matriz de SiO₂ [12]. Sus resultados mostraron que la señal del segundo armónico proviene de los NC-Si y no de la matriz. Esto demostró la sensibilidad de la GSA a la superficie de las nanopartículas y su utilidad para explorar novedosos dispositivos. Adicionalmente, observaron que la intensidad transmitida del segundo armónico presentó una señal muy cercana a la dirección frontal, lo que fue inesperado ya que los resultados teóricos demuestran que al iluminar una esfera con una onda plana no se genera radiación en 2ω a lo largo de la dirección frontal [13]. Esta teoría se desarrolló para esferas iluminadas por ondas planas (esferas de radio $a \ll \lambda$), sin embargo, la respuesta no lineal de las partículas depende del tipo de campo con el que se excita como demostraron Brudny et al. obteniendo resultados alternativos al utilizar un campo longitudinal [14]. Por esta razón Mochán et al. desarrollan la teoría de la respuesta de esferas centrosimétricas iluminadas por un campo no homogéneo y calculan el segundo armónico generado al emplear un haz Gaussiano sobre un arreglo homogéneo de nanoesferas [15]. El mecanismo obtenido de la polarización no lineal mostró un comportamiento de naturaleza cuadrupolar en la respuesta del sistema considerado, es decir, una polarización proporcional al producto del campo eléctrico y sus derivadas espaciales $\propto \mathbf{E} \cdot \nabla \mathbf{E}$ [2,3]. Esto fue verificado experimentalmente al comparar los resultados teóricos con los experimentales de la película de NC-Si, confirmando el modelo fenomenológico de la polarización [16].

En este contexto resulta interesante analizar la respuesta del sistema considerado iluminado con otro tipo de campo incidente con una estructura espacial más inhomogénea que el fundamental y que sea sensible al término del gradiente en la polarización cuadrupolar, como es el caso de los haces que se utilizan en nano-óptica [17]. En particular son de nuestro interés los haces *Hermite-Gauss* (HG) y *Laguerre-Gauss* (LG) por sus múltiples aplicaciones, por ejemplo, se han empleado para guiar átomos, atrapar y manipular partículas, entrelazamiento cuántico y en la teoría de información cuántica [18, 19]. Los haces LG son de gran importancia en la nano-óptica porque además del espín asociado a la polarización circular de la luz poseen un momento angular orbital (MAO) asociado a sus frentes de ondas helicoidales [18, 20].

Lo anterior da resultados mostraron por Bernal et al. al calcular la GSA por un sistema compuesto de nanoesferas pero utilizando combinaciones transversales de dos haces HG polarizados linealmente [21]. Analizaron la respuesta de varias combinaciones de estos haces y encontraron una regla de selección para combinaciones de dos HG con polarizaciones cruzadas, en la que se genera radiación del segundo armónico en la dirección frontal de propagación.

Siguiendo esta teoría, en el presente trabajo se investigan los patrones angulares de radiación del segundo armónico cuadrupolar, generados por la aplicación de haces del tipo Hermite-Gauss (HG) y Laguerre-Gauss (LG) polarizados linealmente o circularmente [17]. En particular, se considera incidencia con modos donas polarizados radial o azimutalmente [18], combinaciones asimétricas de modos HG [21], modos helicoidales con espín y momento angular óptico de tipo orbital [19, 20] y superposición de modos con diferentes estados de polarización [22–24].

La mayor parte de la investigación de GSA por haces Gaussianos, se ha efectuado en sistemas de polarización dipolar y con haces fuertemente enfocados [25–27]. En el presente trabajo se explorará la GSA cuadrupolar por haces Gaussianos pero sin enfocamiento y empleando la aproximación paraxial. También se investigará el momento angular total del

segundo armónico, motivados por recientes trabajos de MAO en la GSA dipolar, en los que se mostró que el haz generado adquiere el doble del momento angular orbital [19].

Capítulo 2

Generación óptica de segundo armónico.

"Un síntoma de que te acercas
a una crisis nerviosa
es creer que tu trabajo
es tremendamente importante."

(BERTRAND RUSSELL.)

La *óptica no-lineal* es la rama de la óptica que estudia el comportamiento de la luz en *medios no lineales*, es decir, en medios cuya respuesta ante un campo eléctrico no varía en forma lineal con el campo. Esta rama se inició a partir del descubrimiento de la *generación de segundo armónico* (GSA). Éste se define como el proceso óptico que ocurre cuando dos fotones con frecuencia ω interactúan en un medio no lineal y se produce un nuevo fotón con el doble de la frecuencia 2ω (Figura 2.1). Fue observada por primera vez por Franken et al.

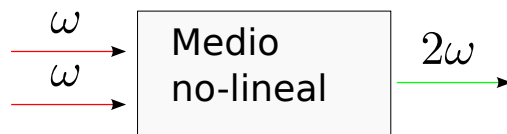


Figura 2.1: Proceso de la generación de segundo armónico. Se ilustra la recombinación de dos fotones con frecuencia ω con un medio no lineal para producir un fotón con el doble de la frecuencia 2ω .

en el año de 1961¹ al iluminar un curazo con un láser de rubí y detectar un haz transmitido al doble de la frecuencia [4].

La GSA o *doblamiento de frecuencia* se utiliza para el estudio de superficies debido a que su señal es fuertemente suprimida en el interior (o bulto) de medios centrosimétricos² pero no en la superficie donde la simetría de inversión espacial se rompe [2]. Muchos estudios han hecho uso de esta regla de selección para la investigación de superficies e interfases de medios centrosimétricos, por ejemplo, se utiliza para determinar la orientación molecular de moléculas adsorbidas y en espectroscopía.

En las siguientes secciones se obtendrán expresiones matemáticas para el segundo armónico a partir de la polarización no lineal y se mostrará su teoría en superficies planas y partículas centrosimétricas.

2.1. Óptica No-lineal

La óptica no-lineal estudia los fenómenos que aparecen cuando la respuesta de un medio a la amplitud del campo electromagnético de la luz no es lineal. Estos sólo pueden ser observados en presencia de campos electromagnéticos muy intensos. De hecho, en el laboratorio los láseres son la única fuente capaz de generar ondas electromagnéticas o luz lo suficientemente intensa para observar un proceso óptico no lineal. Estos últimos se clasifican de acuerdo al orden de la *susceptibilidad eléctrica* $\hat{\chi}$ que se presenta en un medio no lineal, la cual se define cómo la variable de proporcionalidad entre la polarización eléctrica \mathbf{P} y el campo eléctrico que la produjo o potencias de éste. Cuando los campos electromagnéticos son relativamente débiles la relación entre la polarización del medio y campo eléctrico es lineal:

$$\mathbf{P}(t) = \hat{\chi} \cdot \mathbf{E}(t). \quad (2.1)$$

¹Sólo un año después de la demostración del primer láser en 1960 por Maiman et al [1].

²Se llama centrosimétrico a un medio con simetría de inversión espacial.

En el régimen no-lineal, es decir, campos electromagnéticos muy intensos, $\hat{\chi}$ depende de la intensidad del campo eléctrico y se puede escribir como una expansión de $\mathbf{E}(t)$:

$$\begin{aligned} \mathbf{P}(t) &= \hat{\chi}^{(1)} \cdot \mathbf{E}(t) + \hat{\chi}^{(2)} : \mathbf{E}(t)\mathbf{E}(t) + \hat{\chi}^{(3)} : \mathbf{E}(t)\mathbf{E}(t)\mathbf{E}(t) + \dots, \\ &= \mathbf{P}^{(1)}(t) + \mathbf{P}^{(2)}(t) + \mathbf{P}^{(3)}(t) + \dots, \end{aligned} \quad (2.2)$$

donde $\hat{\chi}^{(n)}$ es la susceptibilidad de n-ésimo orden (tensor de rango $n + 1$).

El tensor $\hat{\chi}$ clasifica a los procesos ópticos, por ejemplo en medios lineales (2.1) $\chi^{(1)} \neq 0$ es posible observar efectos ópticos como reflexión, absorción y dispersión de la luz. En un medio no lineal de segundo orden $\chi^{(2)} \neq 0$ describe procesos como la mezcla de tres ondas, el efecto Pockels y la GSA. En medios de tercer orden $\chi^{(3)} \neq 0$ se pueden observar procesos como el efecto Kerr, el efecto Raman, la mezcla de cuatro ondas y la generación de tercer armónico [3]. En general cualquier medio con $\hat{\chi}^{(n)} \neq 0$ con $n > 1$ es llamado medio no lineal.

Las ecuaciones (2.1) y (2.2) son modelos fenomenológicos de cómo las cargas en un medio se desplazan debido a la presencia de un campo eléctrico; las cargas desplazadas pueden representarse como series de momentos multipolares eléctricos (dipolos, cuadrupolos, octapolos, etc). El campo del dipolo eléctrico es usualmente el que aporta la mayor contribución a la polarización eléctrica y seguido en orden de importancia se encuentra el cuadrupolo eléctrico. Las expresiones anteriores se obtienen de considerar sólo las contribuciones de los dipolos eléctricos por lo que esta aproximación es llamada *aproximación dipolar eléctrica*.

Un gran número de procesos no lineales pueden ser resueltos considerando solamente esta aproximación, sin embargo en algunos casos se necesita ir más allá de ésta y considerar el siguiente momento dipolar, es decir, el cuadrupolo eléctrico. Un ejemplo de lo anterior es cuando se toman en cuenta gradientes del campo o de densidad como los que se pueden encontrar en la interfase de dos medios.

En la siguiente sección se mostrará cómo la parte no lineal en la polarización del medio, puede ser fuente de ondas electromagnéticas, para esto se partirá de las ecuaciones de Maxwell

y de ellas obtener la ecuación de onda no lineal que describe la propagación de luz en medios no lineales.

2.2. Ecuación de onda para medios no lineales.

El comportamiento de las ondas electromagnéticas en medios puede ser descrito utilizando las ecuaciones de Maxwell:

$$\nabla \cdot \mathbf{D}(\mathbf{r}, t) = 4\pi\rho(\mathbf{r}, t), \quad (2.3)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{B}(\mathbf{r}, t) = 0, \quad (2.4)$$

$$\nabla \times \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = -\frac{1}{c} \frac{\partial \mathbf{B}(\mathbf{r}, t)}{\partial t}, \quad (2.5)$$

$$\nabla \times \mathbf{H}(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{c} \frac{\partial \mathbf{D}(\mathbf{r}, t)}{\partial t} + \frac{4\pi}{c} \mathbf{J}(\mathbf{r}, t), \quad (2.6)$$

donde \mathbf{D} es el desplazamiento eléctrico, ρ la densidad de carga, \mathbf{B} la inducción magnética, \mathbf{E} el campo eléctrico, \mathbf{H} el campo magnético y \mathbf{J} es la densidad de corriente eléctrica [28].

Nos interesará la solución de las ecuaciones de Maxwell sin fuentes, por lo que $\rho(\mathbf{r}, t) = 0$ y $\mathbf{J}(\mathbf{r}, t) = 0$. Además los materiales o medios usados a lo largo de este trabajo son *no magnéticos*, es decir $\mathbf{B} = \mathbf{H}$.

En el caso de un medio no lineal la relación entre \mathbf{D} y \mathbf{E} es:

$$\mathbf{D}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) + 4\pi\mathbf{P}(\mathbf{r}, t). \quad (2.7)$$

Aplicando el rotacional en (2.5), empleando (2.6) e intercambiando el orden de las derivadas espacial y temporal:

$$\nabla \times \nabla \times \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) + \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{D}(\mathbf{r}, t)}{\partial t^2} = 0. \quad (2.8)$$

Utilizando (2.7) en (2.8)

$$\nabla \times \nabla \times \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) + \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{E}(\mathbf{r}, t)}{\partial t^2} = -\frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{P}(\mathbf{r}, t)}{\partial t^2}. \quad (2.9)$$

La ecuación (2.9) es la forma más general de la ecuación de onda en la óptica no lineal pero puede reescribirse empleando la identidad vectorial:

$$\nabla \times \nabla \times \mathbf{E} = \nabla(\nabla \cdot \mathbf{E}) - \nabla^2 \mathbf{E}. \quad (2.10)$$

El factor $\nabla(\nabla \cdot \mathbf{E})$ puede ser despreciado para campos transversales o utilizando la aproximación de variación lenta de amplitud, la cual se vera con más detalle en la Sección 4.1.

Ignorando $\nabla(\nabla \cdot \mathbf{E})$ y utilizando la identidad (2.9) en (2.10) se obtiene:

$$\nabla^2 \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{E}(\mathbf{r}, t)}{\partial t^2} = \frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{P}(\mathbf{r}, t)}{\partial t^2}. \quad (2.11)$$

Si en (2.11) se separan la polarización que varía linealmente con \mathbf{E} y la polarización no lineal $\mathbf{P}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{P}^{(1)}(\mathbf{r}, t) + \mathbf{P}^{\text{nl}}(\mathbf{r}, t)$ y se utiliza que $\mathbf{D}^{(1)}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) + 4\pi\mathbf{P}^{(1)}(\mathbf{r}, t)$, se puede reescribir la ecuación anterior en la forma:

$$\nabla^2 \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{D}^{(1)}(\mathbf{r}, t)}{\partial t^2} = \frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{P}^{\text{nl}}(\mathbf{r}, t)}{\partial t^2}. \quad (2.12)$$

La ecuación (2.12) puede reducirse para el caso de medios isotrópicos y no dispersivos usando

$$\begin{aligned} \mathbf{D}^{(1)}(\mathbf{r}, t) &= (\bar{I} + 4\pi\hat{\chi}^{(1)}) \cdot \mathbf{E}(\mathbf{r}, t), \\ &= (\bar{I} + 4\pi\chi^{(1)}\delta_{ij}) \cdot \mathbf{E}(\mathbf{r}, t), \\ &= \epsilon^{(1)}\mathbf{E}(\mathbf{r}, t), \end{aligned} \quad (2.13)$$

donde \bar{I} es la matriz identidad, δ_{ij} es la delta de Kronecker y $\epsilon^{(1)}$ es una cantidad escalar llamada *permitividad eléctrica* [2].

Utilizando (2.13) en (2.12)

$$\nabla^2 \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) - \frac{\epsilon^{(1)}}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{E}(\mathbf{r}, t)}{\partial t^2} = \frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{P}^{\text{nl}}(\mathbf{r}, t)}{\partial t^2}. \quad (2.14)$$

La ecuación (2.14) puede interpretarse como una ecuación de onda no homogénea en la que una polarización no lineal \mathbf{P}^{nl} genera un campo eléctrico \mathbf{E} . La cantidad $\frac{\partial^2 \mathbf{P}^{\text{nl}}}{\partial t^2}$ es una medida de las cargas aceleradas en un medio, por lo que esta ecuación es consistente con el teorema de Larmor de electromagnetismo que dice que cargas aceleradas son fuente de radiación electromagnética [28].

2.3. Generación de segundo armónico (GSA)

La GSA es un caso especial de un proceso no lineal de segundo orden, en el cual dos ondas incidentes con una misma frecuencia ω dan origen a través de la \mathbf{P}^{nl} a una tercera onda con el doble de la frecuencia 2ω . Con el propósito de ilustrar esto, se tomará un haz láser con dependencia armónica en el tiempo cuyo campo eléctrico es representado como:

$$\mathbf{E}(t) = \mathbf{E}e^{-i\omega t} + \mathbf{E}e^{i\omega t}. \quad (2.15)$$

Al emplear este campo sobre un medio con $\chi^{(2)} \neq 0$ la polarización no lineal es (2.2):

$$\mathbf{P}^{(2)}(t) = 2\chi^{(2)}\mathbf{E}\mathbf{E}^* + (\chi^{(2)}\mathbf{E}^2e^{-i2\omega t} + \chi^{(2)}\mathbf{E}^2e^{i2\omega t}), \quad (2.16)$$

entonces la polarización de segundo orden consiste de una contribución a frecuencia cero³ y una contribución a frecuencia 2ω o segundo armónico.

2.4. GSA en superficies planas

Como se mencionó anteriormente la GSA dentro de la aproximación dipolar es fuertemente suprimida en el bulto de medios centrosimétricos, para ejemplificar lo anterior se considerará sólo la polarización de segundo orden de la ecuación (2.2), es decir $\mathbf{P}^{(2)} = \hat{\chi}^{(2)} : \mathbf{E}\mathbf{E}$. Aplicando inversión espacial $-\mathbf{P}^{(2)} = \hat{\chi}_I^{(2)} : (-\mathbf{E})(-\mathbf{E})$, donde $\hat{\chi}_I^{(2)}$ es la susceptibilidad con inversión espacial. Sin embargo, como el medio posee simetría de inversión espacial entonces: $\hat{\chi}_I^{(2)} = \hat{\chi}^{(2)}$ lo que implica que la polarización es igual a su inversa $-\mathbf{P}^{(2)} = \mathbf{P}^{(2)}$. Lo anterior sólo se cumple si $\mathbf{P}^{(2)} = 0$ y por lo tanto $\hat{\chi}^{(2)} = 0$ lo que indicaría que no hay segundo armónico de tipo $\mathbf{E}\mathbf{E}$ en medios centrosimétricos. Sin embargo, cerca de la interfase la simetría de inversión se rompe en una capa delgada superficial, la cual puede emitir señal de doblamiento de frecuencia por reflexión (Figura 2.2).

³El primer término es un proceso conocido como *rectificación óptica*, el cual consiste en la creación de un campo eléctrico estático dentro del cristal no lineal.

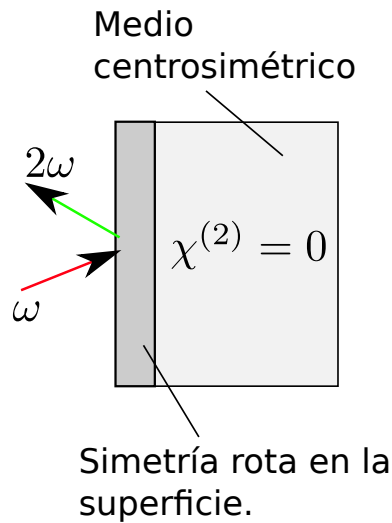


Figura 2.2: La GSA en un medio centrosimétrico es un proceso prohibido pero éste puede existir en la superficie donde se rompe la simetría inversión.

La intensidad de luz emitida por la capa delgada depende sensiblemente de las propiedades estructurales de la superficie y de moléculas adsorbidas en ésta, debido a lo anterior, la GSA es una poderosa herramienta para el estudio de superficies e incluso puede ser usado sin emplear ultra alto vacío y se ha demostrado que es una prueba sensible a interfases enterradas [2].

Existen otras contribuciones al segundo armónico debidas al bulto pero estas son de un origen no dipolar, por lo que se debe ir más allá de la aproximación dipolar y así considerar la siguiente contribución a la polarización, es decir el momento cuadrupolar eléctrico (Figura 2.3).

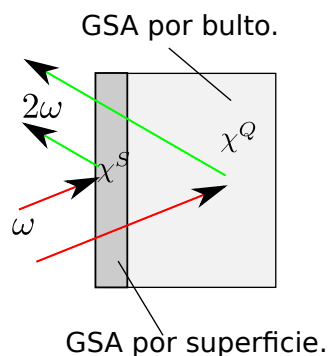


Figura 2.3: GSA de superficie de tipo dipolar y por bulto del tipo cuadrupolar.

2.5. GSA en partículas centrosimétricas

Las primeras observaciones de la GSA en suspensiones coloidales centrosimétricas demostraron la sensibilidad de este proceso no lineal a la superficie de las micropartículas [8]. Este descubrimiento planteó la necesidad de profundizar en la investigación teórica y experimental sobre las propiedades ópticas de partículas, más allá de superficies e interfases planas. Desde entonces los estudios experimentales sobre la GSA en partículas esféricas centrosimétricas fue en aumento, por ejemplo, N. Yang et al. realizaron medidas de la radiación en partículas esféricas centrosimétricas con distintos diámetros ($\sim \lambda$) y diferentes estados de polarización [9]. Los resultados de este experimento revelaron que la GSA en partículas centrosimétricas es sensiblemente dependiente a la polarización y que no existe radiación en la dirección frontal.

En el siguiente capítulo se describirá la teoría electromagnética para el esparcimiento de Rayleigh del segundo armónico que se genera al iluminar una onda plana en una esfera de material centrosimétrico. Además, se presentará un experimento de mediciones de la GSA en un arreglo de nanopartículas centrosimétricas en el que se observó señal de segundo armónico muy cercana a la dirección frontal. Este resultado fue inesperado ya que las mediciones en partículas coloidales mostraban aperturas muy grandes en la radiación, por lo que en el siguiente capítulo también se mostrará la teoría que explica este experimento.

Capítulo 3

Esparcimiento óptico no lineal por nanopartículas.

"La verdadera grandeza
de la ciencia acaba
valorándose por su utilidad."

(GREGORIO MARAÑÓN.)

Como se mencionó en el capítulo anterior la GSA se utiliza habitualmente para el estudio de superficies y películas delgadas. Incluso se ha utilizado en superficies no planas como, por ejemplo, en partículas coloidales ($a \sim \lambda$) y recientemente en películas de nanocristales (NC) esféricos de Si¹ embebidos en una matriz de SiO₂ (NC-Si/SiO₂). Éstas últimas son de suma importancia debido a sus múltiples aplicaciones como memorias no volátiles y dispositivos emisores de luz [10, 11]. Motivados por lo anterior Y.Jiang et al. utilizaron la GSA para estudiarlas, sus resultados demostraron la sensibilidad del segundo armónico a la superficie de las nanopartículas y su utilidad para estudiar novedosos dispositivos [12].

Un resultado interesante fue que las mediciones de la intensidad transmitida presentó dos

¹Nanopartículas de radio $a \ll \lambda$.

picos muy cercanos de la dirección frontal y con una apertura angular muy estrecha (Sección 3.2). Esto fue inesperado ya que los resultados teóricos obtenidos por Dadap et al. [13] demuestran que al emplear una onda plana en una esfera no se genera radiación en 2ω a lo largo de la dirección frontal (Sección 3.1). La teoría anterior fue desarrollada para esferas iluminadas por ondas planas, pero la respuesta no lineal de las partículas depende del tipo de campo con el que se excita como demostraron Brudny et al. al obtener resultados alternativos al utilizar un campo longitudinal [14]. Por esta razón Mochán et al. desarrollan la teoría de la respuesta de esferas centrosimétricas iluminadas por un campo no homogéneo [15]. Además calculan el segundo armónico generado al iluminar con un haz láser un sistema homogéneo construido por una mezcla de nanoesferas, y comparan sus resultados con los de la película de NC-Si/SiO₂ (Sección 3.3).

3.1. Segundo armónico en una esfera de material centrosimétrico

Dadap et al. desarrollan la teoría electromagnética del esparcimiento de Rayleigh en el segundo armónico generado al iluminar con una onda plana una esfera pequeña de material centrosimétrico [13]. En este trabajo se usaron expansiones multipolares para poder ir más allá de la aproximación dipolar eléctrica, con esto pudieron identificar los mecanismos de excitación y radiación (Figura 3.1).

El análisis presentado reveló que las contribuciones predominantes a la radiación provienen de dos fuentes: un momento dipolar eléctrico no local efectivo $\mathbf{p}^{(2)}$ y un momento cuadrupolar eléctrico \mathbf{Q} . Por lo que la radiación en el campo lejano es:

$$\mathbf{E}^{(2\omega)}(r) = \frac{K_1 e^{iK_1 r}}{\epsilon_1(2\omega)r} \left[\hat{\mathbf{n}} \times \left(\mathbf{p}^{(2)} - \frac{iK_1}{6} \mathbf{Q}(\hat{\mathbf{n}}) \right) \right] \times \hat{\mathbf{n}}, \quad (3.1)$$

donde ϵ_1 es la función dieléctrica del medio fuera de la esfera, $K_1 = [\epsilon_1(2\omega)]^{\frac{1}{2}} 2q$ es la magnitud

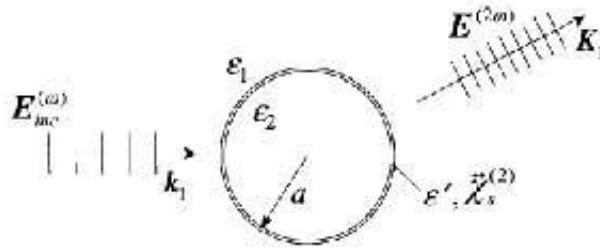


Figura 3.1: GSA por esparcimiento de Rayleigh en una esfera de material centrosimétrico [13].

del vector de onda del segundo armónico fuera de la esfera, $q = \omega/c$ y $\mathbf{Q}(\hat{\mathbf{n}})$ representa el cuadrupolo proyectado en la dirección de observación $\hat{\mathbf{n}}$ [13]. En cuanto al dipolo eléctrico se observó una orientación inusual en la dirección de propagación² \mathbf{k} . Esto demostró que su contribución a la radiación proviene de una excitación no local, es decir, de gradientes del campo (Figura 3.2). También se observó que la potencia radiada escala como ω^6 lo cual contrasta con el caso lineal que escala con ω^4 [29]. Estas diferencias pueden entenderse observando que para el caso lineal existe contribución de bulto a orden dipolar pero para el caso del segundo armónico, la contribución del dipolo eléctrico a segundo orden se obtiene de un proceso no local en la superficie ($\mathbf{p}^{(2)} \sim \nabla \mathbf{E}$).

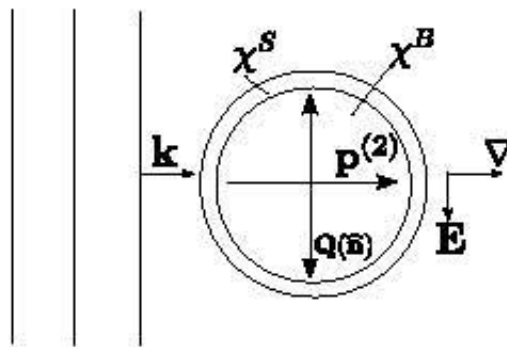


Figura 3.2: Momentos dipolar y cuadrupolar no lineales inducidos en una esfera por una onda plana. El dipolo apunta en la dirección del gradiente del campo mientras que el cuadrupolo es paralelo al campo eléctrico aplicado.

²A diferencia del régimen lineal de esparcimiento en donde el dipolo eléctrico se orienta en la dirección del campo eléctrico.

Además obtuvieron los patrones angulares de radiación de los momentos no lineales, los cuales mostraron que ninguno posee radiación en la dirección frontal. Por lo tanto demostraron que una esfera centrosimétrica iluminada por una onda plana no genera radiación del segundo armónico en la dirección frontal. El resultado anterior no se restringe a esferas pequeñas sino se cumple para esferas de radio arbitrario y ha sido verificado experimentalmente en suspensiones coloidales [9].

3.2. Nanocrisales de Si en una matriz de SiO_2 .

El experimento de Y. Jiang et al. consistió de emplear un láser de Ti:S con pulsos de duración $\tau_p = 200$ fs sobre una película de NC-Si/ SiO_2 para medir la GSA en transmisión [12].

Las muestras de nanocrisales fueron preparadas por implantación secuencial de iones de Si a seis diferentes energías (35 keV a 500 keV) dentro de sustratos SiO_2^3 de 0.9 mm de espesor. Con esto formaron una densidad homogénea de iones de Si implantados a una profundidad de 1μ m. La formación de NCs de diámetro promedio de 3 nm y con fluctuaciones en el tamaño del 30 % fue precipitada por una pos-implantación de recocido en Ar o en una mezcla de Ar/ H_2 . En 1 mm del ancho de la muestra no se implantan NCs para normalizar la señal espectroscópica en esta región (Figura 3.3).

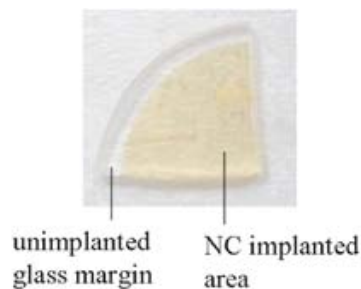


Figura 3.3: Fotografía de la muestra con una capa amarillenta de NCs de Si. No se implantan NC-Si en 1 mm de la muestra. Adaptado de [39]

³Comúnmente llamada sílica fundida o vidrio

Los pulsos del láser con estructura espacial Gaussiana y de cintura $w_0 \approx 10 \mu\text{m}$, fueron enfocados en incidencia normal en la muestra para medir el segundo armónico transmitido con un espectrómetro y observarse con un CCD (Figura 3.4).

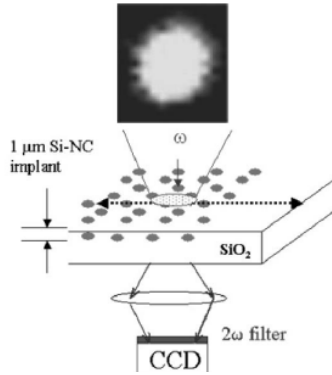


Figura 3.4: Arreglo experimental mostrando el haz Gaussiano incidente polarizado linealmente. Adaptado de [16]

Los resultados mostraron que la región de la película donde no se implantó NCs no producían ninguna señal detectable del segundo armónico. Sin embargo al pasar el haz por la zona implantada, la señal aumentaba inmediatamente a ~ 100 fotones con 2ω por segundo, probando que la señal provenía de los NCs (Figura 3.5-izquierda). Por otro lado, se observó en un CCD el patrón de radiación del haz de una región uniforme de NC-Si (Figura 3.5-derecha). El haz mostró una estructura de dos lóbulos con una apertura angular muy estrecha de tan

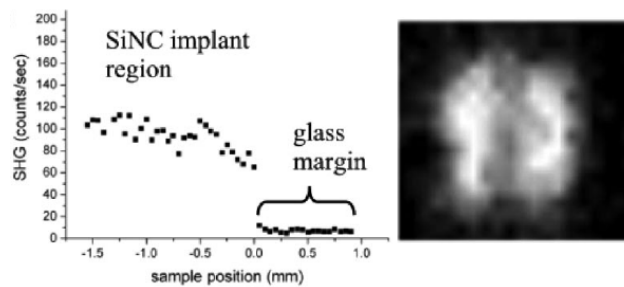


Figura 3.5: Medidas experimentales. Del lado izquierdo la señal mostrada por el espectrómetro, en la gráfica se observa que la GSA proviene solamente de la región implantada con NCs. Del lado derecho la imagen mostrada por el CCD, en esta se observa un modo con estructura $TEM_{1,0}$. Adaptado de [16]

sólo 1° , a diferencia de las mediciones con partículas coloidales en la que la apertura angular

era de $\sim 50^\circ$ [9]. Yang et al. sugirieron que estas diferencias en la radiación eran debidas a fluctuaciones en la densidad, tamaño y forma de las partículas pero la distribución angular de la radiación es inconsistente con la señal incoherente esperada en fluctuaciones [14]. No obstante, se puede presentar radiación coherente cuando una muestra es iluminada con un haz de un ancho finito, como el usado en este experimento.

Lo anterior puede entenderse de la Figura 3.6, en la que se muestran esquemáticamente los dipolos inducidos al iluminar el arreglo con un haz enfocado. Cerca del centro del haz, los dipolos apuntan en la dirección frontal por lo que no podrán radiar en ésta. Sin embargo cuando se aproxima el borde de la mancha la amplitud fundamental decae y el gradiente creado desvía los dipolos fuera de la dirección frontal. En consecuencia, estos dipolos podrán radiar cerca de la dirección frontal.

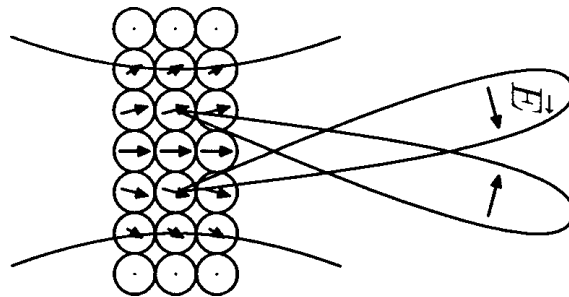


Figura 3.6: Esquema de los dipolos inducidos por un haz enfocado en un compuesto de esferas centrosimétricas. Adaptado de [15]

En la siguiente sección se presentará la teoría de Mochan et al. para la radiación coherente de un arreglo de nanoesferas centrosimétricas iluminadas no por una onda plana (como en la teoría de Dadap et al.) sino por un haz finito (como en el experimento).

3.3. Segundo armónico en una película de nanopartículas esféricas.

Mochan et al. desarrollan la teoría del segundo armónico producido por un campo eléctrico arbitrario no homogéneo actuando sobre una esfera centrosimétrica [15]. Se encontró que las contribuciones más importantes del segundo armónico son: un momento dipolar no local $\mathbf{p}^{(2)} \propto (\mathbf{E} \cdot \nabla)\mathbf{E}$ y un momento cuadrupolar $\widehat{\mathbf{Q}}^{(2)}$. Además se encontró la polarización no lineal de un arreglo compuesto de esferas centrosimétricas. Se obtuvo la polarización del arreglo considerando las contribuciones dipolar y cuadrupolar de cada esfera:

$$\mathbf{P}^{nl} = n_{NC}\mathbf{p}^{(2)} - \frac{1}{6}\nabla n_{NC}\widehat{\mathbf{Q}}^{(2)}, \quad (3.2)$$

con n_{NC} la densidad de nanoesferas en el arreglo. La ecuación (3.2) resulta de promediar esféricamente las contribuciones dipolares de superficie y cuadrupolares del bulto por esfera. Al sustituir los momentos multipolares obtenidos para el caso de una esfera centrosimétrica se obtiene:

$$\mathbf{P}^{nl} = \Delta'\mathbf{E} \cdot \nabla\mathbf{E} + \text{parte no radiativa}, \quad (3.3)$$

donde la función Δ' se encuentra en términos de las hiperpolarizibilidades que caracterizan las respuestas multipolares de bulto y superficie de una sola esfera.

Ahora se considerará un medio de ancho l en el plano $z = 0$ iluminado por un haz finito con cintura w_0 , suponiendo que el sistema considerado es muy angosto comparado con la longitud de onda, como la película de NCs de la sección 3.2 (Figura 3.7).

De acuerdo a (2.14) el haz incidente inducirá una polarización no lineal (3.3), la cual será fuente de un nuevo campo eléctrico con el doble de la frecuencia:

$$\nabla^2\mathbf{E}_{2\omega}(\mathbf{r}, t) - \frac{1}{c^2}\frac{\partial^2\mathbf{E}_{2\omega}(\mathbf{r}, t)}{\partial t^2} = \frac{4\pi}{c^2}\frac{\partial^2\mathbf{P}^{nl}(\mathbf{r}, t)}{\partial t^2}, \quad (3.4)$$

donde se tomó $\epsilon^{(1)} = 1$, la cual es la permitividad del vacío.

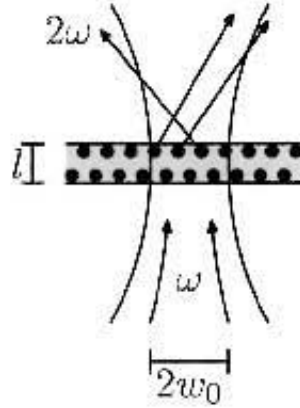


Figura 3.7: *Haz Gaussiano con mancha de radio w_0 enfocado en una pequeña película con un ancho l originando radiación en el segundo armónico. Adaptado de [15].*

Los resultados experimentales y teóricos pueden compararse si se obtiene la intensidad de la radiación del segundo armónico por ángulo sólido $\frac{dI_{2\omega}(\hat{n})}{d\Omega}$, para facilitar los cálculos se considerará el potencial vectorial $\mathbf{A}_{2\omega}$ pero en la *norma de radiación o transversal*, ya que ésta separa convenientemente la parte transversal en la polarización no lineal $[\mathbf{P}^{nl}]^T$ responsable de la radiación [28]. En esta norma los campos se reescriben como

$$\begin{aligned}\mathbf{E}_{2\omega}(\mathbf{r}, t) &= -\frac{1}{c} \frac{\partial \mathbf{A}_{2\omega}(\mathbf{r}, t)}{\partial t}, \\ \mathbf{B}_{2\omega}(\mathbf{r}, t) &= \nabla \times \mathbf{A}_{2\omega}(\mathbf{r}, t).\end{aligned}\tag{3.5}$$

Empleando (3.5) en (3.4) y efectuando las derivadas temporales tomando en cuenta el doblamiento de frecuencia se obtiene:

$$\nabla^2 \mathbf{A}^T(\mathbf{r}) + (2q)^2 \mathbf{A}^T(\mathbf{r}) = 2iq \frac{4\pi}{c} [\mathbf{P}^{nl}(\mathbf{r})]^T,\tag{3.6}$$

en donde el superíndice T indica que sólo se toma la parte transversal.

La ecuación (3.6), es una ecuación de Helmholtz no homogénea cuya solución se encuentra con el método de la *función de Green* [30]

$$\mathbf{A}^T(\mathbf{r}) = -2iq \int \frac{e^{2iq|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|}}{|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|} [\mathbf{P}^{nl}(\mathbf{r}')]^T d^3r'.\tag{3.7}$$

La integral anterior puede simplificarse si se asume que el punto de observación r está muy lejos del sistema considerado y del punto de iluminación, es decir, si se utiliza la *aproximación de zona de radiación* [28]. En ésta se puede aproximar:

$$\frac{e^{2iq|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|}}{|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|} \approx \frac{e^{2iqr}}{r} e^{-(2iq)\hat{\mathbf{n}}\cdot\mathbf{r}'},$$

con $\hat{\mathbf{n}} = (\sin \theta \cos \varphi, \sin \theta \sin \varphi, \cos \theta)$ un vector unitario en la dirección de \mathbf{r} y (r, θ, φ) las coordenadas esféricas. Si además se supone que el sistema considerado es muy angosto comparado con la longitud de onda, $ql \ll 1$, el potencial vectorial (3.7) es

$$\mathbf{A}^T(\mathbf{r}) = -2iql \frac{e^{2iqr}}{r} (\mathbf{P}^{\text{nl}})_K^T, \quad (3.8)$$

donde se introdujo la transformada de Fourier 2-D

$$(\mathbf{P}^{\text{nl}})_K = \int \mathbf{P}^{\text{nl}}(\mathbf{r}_{\parallel}, z=0) e^{-i\mathbf{K}\cdot\mathbf{r}_{\parallel}} d\mathbf{r}_{\parallel}, \quad (3.9)$$

con $\mathbf{K} = 2q\hat{\mathbf{n}}_{\parallel} = 2q \sin \theta (\cos \varphi \hat{\mathbf{x}} + \sin \varphi \hat{\mathbf{y}}) = K_x \hat{\mathbf{x}} + K_y \hat{\mathbf{y}}$ y $\mathbf{r}_{\parallel} = x\hat{\mathbf{x}} + y\hat{\mathbf{y}}$.

Con el propósito de comparar los resultados teóricos con los experimentales, se considera que en $z = 0$ el campo incidente \mathbf{E} esta dado por un haz Gaussiano de ancho $w_0 \gg \lambda$ y se propaga nominalmente en la dirección $\hat{\mathbf{z}}$ (Figura 3.8). El haz en $z = 0$ linealmente polarizado puede ser representado por (Capítulo 4):

$$E(\mathbf{r}_{\parallel}, 0) = E_0 e^{-r_{\parallel}^2/w_0^2} \hat{\mathbf{x}}. \quad (3.10)$$

Considerando sólo la parte transversal de (3.3) en la ecuación (3.9)

$$(\mathbf{P}^{\text{nl}})_K = \Delta' \int e^{-i\mathbf{K}\cdot\mathbf{r}_{\parallel}} \mathbf{E} \cdot \nabla \mathbf{E} d\mathbf{r}_{\parallel}, \quad (3.11)$$

$$= \frac{i\pi}{4} K_x w_0^2 e^{-K^2 w_0^2} E_0^2 \hat{\mathbf{x}}. \quad (3.12)$$

Sustituyendo en el potencial vectorial (3.8):

$$\mathbf{A}^T(\mathbf{r}) = 2\pi l \frac{\theta}{\theta_0} \cos \varphi e^{-2\theta^2/\theta_0^2} \frac{e^{2iqr}}{r} \Delta' E_0^2 \hat{\mathbf{x}}, \quad (3.13)$$

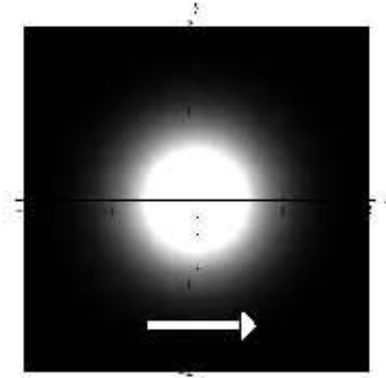


Figura 3.8: *Intensidad de un haz Gaussiano linealmente polarizado en x .*

donde se utilizó que $\theta_0 = \frac{2}{qw_0} \sim \frac{\lambda}{w_0} \ll 1 \therefore \sin \theta \approx \theta$.

Con el potencial vectorial se puede obtener el campo eléctrico radiado $\mathbf{E}^r = 2iq\mathbf{A}^T$ y con éste el vector de Poynting $\mathbf{S}(r\hat{\mathbf{n}}) = \frac{c}{8\pi}|\mathbf{E}^r|^2\hat{\mathbf{n}}$ para obtener finalmente, la intensidad de la radiación del segundo armónico en la dirección $\hat{\mathbf{n}}$ por unidad de ángulo sólido [28]:

$$\begin{aligned} \frac{dI_{2\omega}(\hat{\mathbf{n}})}{d\Omega} &= r^2\mathbf{S}(r\hat{\mathbf{n}}) \cdot \hat{\mathbf{n}}, \\ &= r^2\frac{c}{8\pi}|\mathbf{E}^r|^2, \\ &= r^2\frac{c}{8\pi}|2iq\mathbf{A}^T|^2. \end{aligned} \quad (3.14)$$

Sustituyendo el potencial vectorial (3.13) en (3.14)

$$\frac{dI_{2\omega}(\hat{\mathbf{n}})}{d\Omega} = \frac{c}{8\pi}\pi^2(2q)^4|\Delta'lE_0^2\frac{\theta}{\theta_0}\cos\varphi e^{-2\theta^2/\theta_0^2}|^2. \quad (3.15)$$

Por lo tanto para un haz Gaussiano incidente polarizado linealmente, el patrón de radiación en 2ω $[(\mathbf{E} \cdot \nabla)\mathbf{E}]_K$ tiene la estructura espacial mostrada en la Figura 3.9, muy similar a la observada experimentalmente. La estructura de este modo y la escala en la intensidad confirma la predicción de una polarización no lineal proporcional a $(\mathbf{E} \cdot \nabla)\mathbf{E}$ [16].

En este trabajo se iluminó la película con un haz Gaussiano pero existen otros haces cuya estructura espacial difiere en gran medida del haz Gaussiano convencional, por ejemplo, los haces Hermite-Gauss y Laguerre-Gauss los cuales tienen muchas aplicaciones en nano-óptica y en fotónica [18]. En este contexto resulta interesante estudiar la respuesta a estos haces de

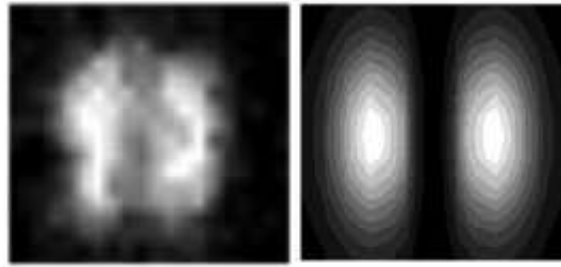


Figura 3.9: *Comparación del experimento (izquierda) y la teoría desarrollada en [15] (derecha).*

un sistema con polarización proporcional a $(\mathbf{E} \cdot \nabla)\mathbf{E}$. En el siguiente capítulo presentaremos la teoría de los haces Gaussianos con los que trabajaremos más adelante.

Capítulo 4

Haces Gaussianos.

"Las Matemáticas pueden ser definidas como aquel tema en el cual ni sabemos nunca lo que decimos ni si lo que decimos es verdadero."

(BERTRAND RUSSELL.)

En óptica un haz Gaussiano es un haz de radiación electromagnética cuya distribución de campo eléctrico y amplitud puede ser aproximado por funciones Gaussianas. Estos haces se utilizan en la descripción de los perfiles de la mayoría de láseres debido a que cumplen con la *ecuación de Helmholtz paraxial*, que describe la propagación de ondas electromagnéticas cuyas variaciones en fase y amplitud son lentas en una distancia z , es decir, ondas con dependencia armónica en el tiempo y con una amplitud que varía muy lentamente en una longitud de onda.

En un haz de este tipo no existe campo eléctrico ni magnético en la dirección de propagación, por lo que también es llamado modo transversal electromagnético $TEM_{0,0}$. Un haz con un perfil Gaussiano no es la única solución de la ecuación de Helmholtz paraxial, existen

otras soluciones como los haces *Hermite-Gauss* y *Laguerre-Gauss* llamados modos de orden superior [17]. Estos modos poseen muchas aplicaciones, por ejemplo se han empleado para guiar átomos, atrapar y manipular partículas, entrelazamiento cuántico y en la teoría de información cuántica [18, 19]. En particular los modos Laguerre-Gauss son de gran importancia en la nano-óptica porque además del espín asociado a la polarización circular de la luz poseen un momento angular orbital asociado a sus frentes de ondas helicoidales [18, 20].

En este capítulo se deducirá la ecuación de Helmholtz paraxial para de ésta obtener los modos Gaussianos con los que trabajaremos en el capítulo 5, además se mostrarán propiedades de estos haces y de combinaciones de ellos.

4.1. Ecuación de Helmholtz paraxial

En esta sección se obtendrá la ecuación de Helmholtz paraxial cuyas soluciones son los haces Gaussianos, para esto se partirá de la ecuación (2.11) con polarización igual a cero, es decir, la ecuación de onda en el vacío:

$$\nabla^2 \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{E}(\mathbf{r}, t)}{\partial t^2} = 0. \quad (4.1)$$

Al proponer una dependencia armónica en los campos electromagnéticos $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = E(\mathbf{r})e^{-i\omega t} \hat{\mathbf{e}}$ en (4.1), se obtiene la ecuación de Helmholtz:

$$(\nabla^2 + q^2)E(\mathbf{r}) = 0, \quad (4.2)$$

donde $q = \omega/c$.

La solución más simple de (4.2) en un medio homogéneo es la onda plana

$$E(\mathbf{r}) = Ae^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}}, \quad (4.3)$$

donde A es una constante compleja que representa la amplitud de la onda y $\mathbf{q} = (q_x, q_y, q_z)$ es el *vector de onda*. Si se toma el eje $\hat{\mathbf{z}}$ en la dirección del vector de onda \mathbf{q}

$$E(\mathbf{r}) = Ae^{iqz}. \quad (4.4)$$

Para obtener la ecuación de Helmholtz paraxial se considerará el campo de la óptica geométrica, en el que la luz es representada como rayos que al incidir en superficies reflectoras forman ángulos. Los rayos reflejados con ángulos muy pequeños respecto al eje de la superficie, se les conoce como *rayos paraxiales* y la aproximación de sólo considerar este tipo de rayos es llamada *aproximación paraxial*. Las reglas o resultados de lo anterior es el campo conocido como *óptica paraxial* [17].

Las ondas cuya normal de frente de onda puede ser representadas por un rayo paraxial se llaman *ondas paraxiales*. Una forma de crear una onda paraxial es iniciar con una onda plana y modular su amplitud compleja $A(\mathbf{r})$ haciéndola una función que varíe lentamente con la posición:

$$E(\mathbf{r}) = A(\mathbf{r})e^{iqz}. \quad (4.5)$$

La onda paraxial cumple con la ecuación de Helmholtz si la envolvente de la onda paraxial cumple con otra ecuación obtenida al sustituir (4.5) en (4.2). Se supuso que la envolvente $A(\mathbf{r})$ varía lentamente con respecto a z , entonces en una distancia $\Delta z = \lambda$ el cambio ΔA es mucho menor que A (Figura 4.1). Por esta razón en la ecuación obtenida de los pasos

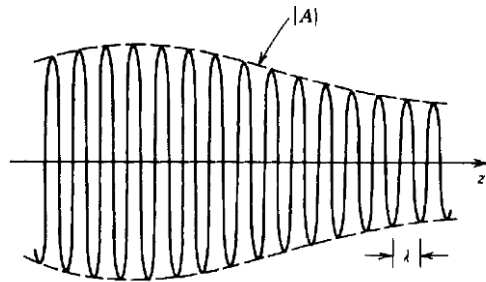


Figura 4.1: Magnitud de una onda paraxial como una función de z , la envolvente compleja A cambia muy lentamente en una longitud de onda λ .

anteriores se puede despreciar $\frac{\partial^2 A}{\partial z^2}$, en comparación con $q\frac{\partial A}{\partial z}$ o $q^2 A$, por lo cual, la ecuación de la envolvente se reduce a:

$$\nabla_T^2 A + 2iq\frac{\partial A}{\partial z} = 0, \quad (4.6)$$

donde $\nabla_T^2 = \frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2}$ es el laplaciano transversal.

La ecuación (4.6) es la aproximación de envolvente lenta de la ecuación de Helmholtz comúnmente llamada ecuación de Helmholtz paraxial¹. Una solución es el haz Gaussiano simple (Sección 4.1.1), sin embargo existen otras soluciones llamadas modos de orden superior como los haces Hermite-Gauss y Laguerre-Gauss. Los primeros son soluciones en coordenadas cartesianas por lo que son útiles para describir modos de luz láser con simetría cartesiana (Sección 4.1.2). Mientras que los segundos son soluciones en coordenadas cilíndricas por lo que son útiles para modelar modos de luz láser con simetría cilíndrica (Sección 4.1.3).

4.1.1. Haz Gaussiano.

El haz Gaussiano o la solución a orden cero de (4.5), se obtiene al introducir la función de prueba [17]:

$$E(x, y, z) = E_0 e^{\frac{iq(x^2+y^2)}{2q(z)}} e^{ip(z)}. \quad (4.7)$$

Se puede comprobar fácilmente que la ecuación (4.7) es solución de (4.6). Por lo que la solución a la ecuación de Helmholtz paraxial se reduce a encontrar las funciones $q(z)$ y $p(z)$. La función de prueba fija la dependencia de las coordenadas x y y , forzando la solución a tener un perfil transversal simétrico.

Al sustituir la ecuación (4.7) en (4.6) y escoger una solución compleja para $q(z)$, se encuentra que el campo eléctrico para un haz Gaussiano puede reescribirse de la forma [31]:

$$\mathbf{E}(r, z) = E_0 \frac{w_0}{w(z)} e^{\frac{-r^2}{w^2(z)}} e^{-iqz - iq\frac{r^2}{2R(z)} + i\varphi(z)} \hat{\mathbf{e}}, \quad (4.8)$$

donde $r^2 = x^2 + y^2$, $\hat{\mathbf{e}}$ es un vector en la dirección transversal, E_0 es una constante asociada a la amplitud del campo eléctrico, $w(z) = w_0 \sqrt{1 + (\frac{z}{z_0})^2}$ es la cintura del haz a cualquier distancia de z , w_0 es el ancho del haz ($10\mu\text{m}$ en el experimento del capítulo anterior), $z_R = \frac{\pi w_0^2}{\lambda}$ es

¹Esta ecuación posee una forma similar a la ecuación de Schrödinger dependiente del tiempo por lo que también posee soluciones similares.

conocido como el rango de Rayleigh, $R(z) = z \left[1 + \left(\frac{z_R}{z} \right)^2 \right]$ es el radio de curvatura del frente de onda y $\varphi(z) = \tan^{-1}\left(\frac{z}{z_R}\right)$ es la fase de Gouy. En la Figura 4.2 se muestra un haz Gaussiano.

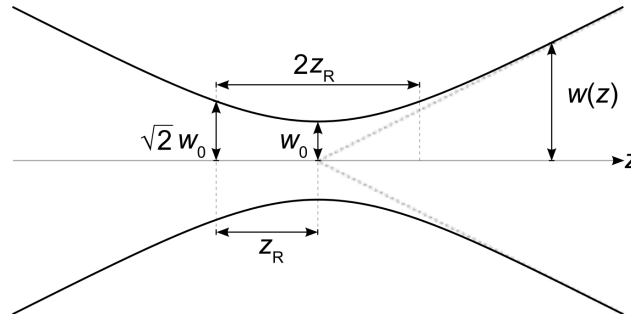


Figura 4.2: Haz Gaussiano con ancho $w(z)$ como función de z , w_0 es la cintura del haz y z_R es el rango de Rayleigh.

4.1.2. Haz Hermite-Gauss.

Las soluciones de orden superior de la ecuación Helmholtz paraxial dependen del sistema de coordenadas que se elija, por ejemplo en coordenadas cartesianas se puede considerar una función de prueba más general [17]:

$$E(x, y, z) = E_0 g(x, z) h(y, z) e^{\frac{iq(x^2+y^2)}{2q(z)}} e^{ip(z)}. \quad (4.9)$$

A diferencia del haz Gaussiano simple ahora se ha propuesto una solución que permita funciones independientes en x y y . Al sustituir la función de prueba (4.9) en (4.6) se obtienen dos ecuaciones diferenciales de Hermite para g y h . Entonces la solución final tiene la forma [31]

$$\mathbf{E}(x, y, z) = E_0 \frac{w_0}{w(z)} H_m \left[\frac{\sqrt{2}x}{w(z)} \right] H_n \left[\frac{\sqrt{2}y}{w(z)} \right] e^{-\frac{x^2+y^2}{w(z)^2}} e^{i\frac{q(x^2+y^2)}{2R(z)}} e^{-i\varphi_{mn}(z)} \hat{\mathbf{e}}, \quad (4.10)$$

donde m y n son el orden de los polinomios de Hermite H en x y y respectivamente, y $\varphi_{mn}(z) = (m+n+1) \tan^{-1}\left(\frac{z}{z_0}\right)$ es el desplazamiento de la fase de Gouy [17].

El haz (4.10) es conocido como modo Hermite-Gauss o modo transversal rectangular $\text{TEM}_{m,n}$, donde el índice m y n describen el polinomio de Hermite en x y y respectivamente.

Si los índices m y n son iguales a cero, este modo se reduce al caso de un haz Gaussiano simple o $\text{TEM}_{0,0}$.

Por simplicidad se considerarán los modos Hermite-Gauss en $z = 0$ los cuales se reducen a:

$$\begin{aligned} \mathbf{E}(x, y) &= E_0 H_m \left[\frac{\sqrt{2}x}{w_0} \right] H_n \left[\frac{\sqrt{2}y}{w_0} \right] e^{-r^2/w_0^2} \hat{\mathbf{e}}, \\ &= E_0 \text{HG}_{m,n} \hat{\mathbf{e}}, \end{aligned} \quad (4.11)$$

donde se ha introducido la notación $H_m \left[\frac{\sqrt{2}x}{w_0} \right] H_n \left[\frac{\sqrt{2}y}{w_0} \right] e^{-r^2/w_0^2} = \text{HG}_{m,n}$. En la Figura 4.3 se muestran distintos modos Hermite-Gauss.

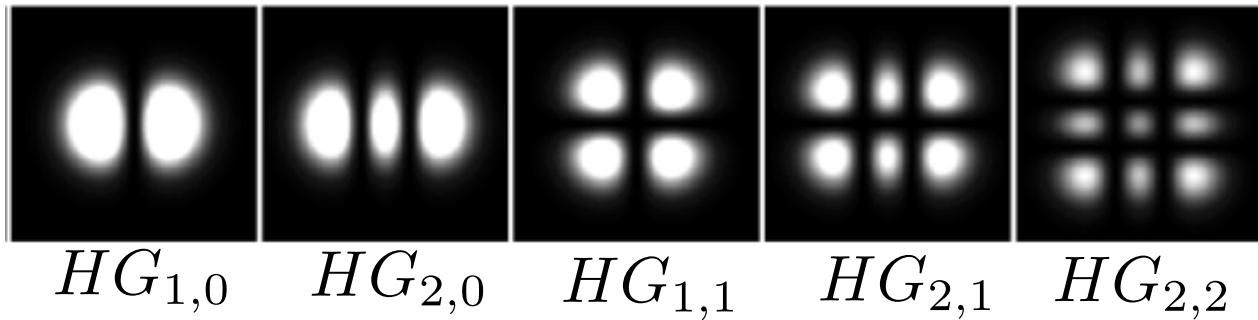


Figura 4.3: Modos Hermite-Gauss ($\text{HG}_{m,n}$) con distinto orden.

Ahora se considerará la superposición de dos modos Hermite-Gauss en $z = 0$ con la misma amplitud ($E_0 = 1$) pero con distintas direcciones transversales $\hat{\mathbf{e}}_1$ y $\hat{\mathbf{e}}_2$

$$\mathbf{E}(x, y) = \text{HG}_{m_1, n_1} \hat{\mathbf{e}}_1 + \text{HG}_{m_2, n_2} \hat{\mathbf{e}}_2. \quad (4.12)$$

Ejemplos de la superposición de dos modos HG son los tres modos dona que se presentarán a continuación.

El primer modo dona importante es el haz generado al combinar dos modos HG en la

forma

$$\begin{aligned}
 \mathbf{E}(x, y) &= \text{HG}_{1,0}\hat{\mathbf{x}} + \text{HG}_{0,1}\hat{\mathbf{y}}, \\
 &= \frac{2\sqrt{2}}{w_0}xe^{-\frac{r^2}{w_0^2}}\hat{\mathbf{x}} + \frac{2\sqrt{2}}{w_0}ye^{-\frac{r^2}{w_0^2}}\hat{\mathbf{y}}, \\
 &= \frac{2\sqrt{2}}{w_0}re^{-\frac{r^2}{w_0^2}}\hat{\mathbf{r}},
 \end{aligned} \tag{4.13}$$

este nuevo haz generado es conocido como *dona Gaussiana radialmente polarizada* debido a su estructura espacial y polarización (Figura 4.4).

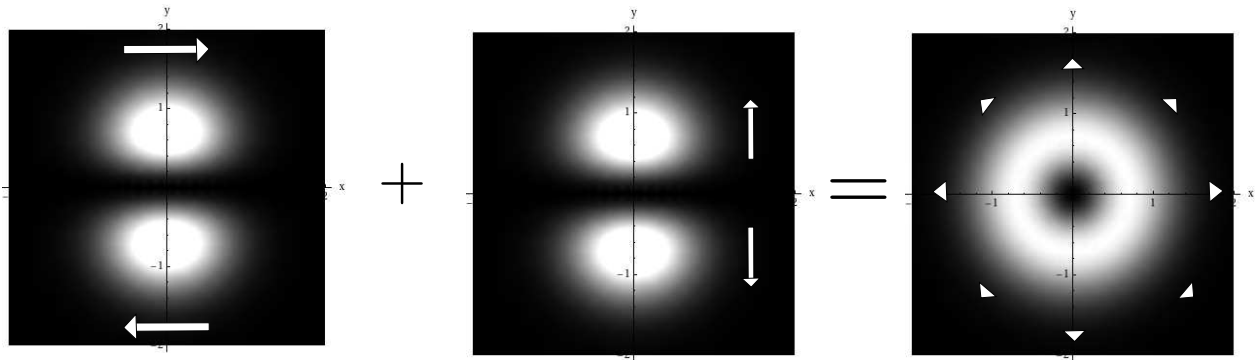


Figura 4.4: Intensidad de la superposición de los modos $\text{HG}_{1,0}\hat{\mathbf{x}}$ y $\text{HG}_{0,1}\hat{\mathbf{y}}$ cuya combinación genera la *dona radialmente polarizada*.

El segundo modo *dona* destacado se puede obtener al superponer dos modos en la forma

$$\begin{aligned}
 \mathbf{E}(x, y) &= \text{HG}_{0,1}\hat{\mathbf{x}} - \text{HG}_{1,0}\hat{\mathbf{y}}, \\
 &= \frac{2\sqrt{2}}{w_0}ye^{-\frac{r^2}{w_0^2}}\hat{\mathbf{x}} - \frac{2\sqrt{2}}{w_0}xe^{-\frac{r^2}{w_0^2}}\hat{\mathbf{y}}, \\
 &= -\frac{2\sqrt{2}}{w_0}re^{-\frac{r^2}{w_0^2}}\hat{\phi},
 \end{aligned} \tag{4.14}$$

este haz es llamado *dona Gaussiana azimutalmente polarizada* (Figura 4.5).

Las donas polarizadas radialmente y azimutalmente son interesantes por las propiedades especiales que se originan al ser fuertemente enfocados. En particular, el haz radialmente polarizado cuando se enfoca fuertemente genera un campo eléctrico longitudinal en la vecindad del punto focal, el cual puede usarse para atrapar partículas o para microscopía de

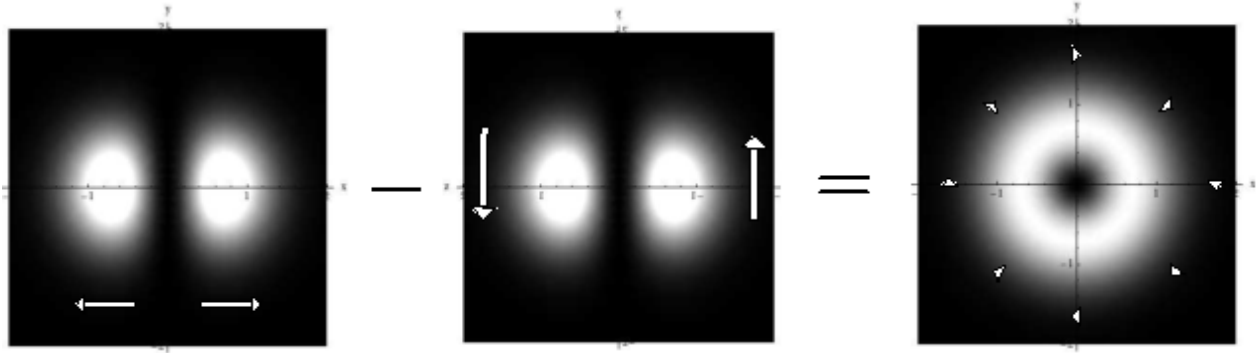


Figura 4.5: Intensidad de la superposición de los modos $HG_{0,1}\hat{x}$ y $HG_{1,0}\hat{y}$ cuya combinación genera la dona azimutalmente polarizada.

alta resolución [18]. En cambio, el haz polarizado azimutalmente es interesante porque al enfocarse fuertemente conserva el hueco en la distribución de intensidad cerca de la región focal, el cual puede ser una herramienta efectiva para enfocar un haz atómico [32].

El tercer modo dona interesante se puede obtener al combinar dos modos en la forma

$$\begin{aligned}
 \mathbf{E}(x, y) &= HG_{1,0}\hat{x} + iHG_{0,1}\hat{x}, \\
 &= \frac{2\sqrt{2}}{w_0}xe^{-\frac{r^2}{w_0^2}}\hat{x} + i\frac{2\sqrt{2}}{w_0}ye^{-\frac{r^2}{w_0^2}}\hat{x}, \\
 &= \frac{2\sqrt{2}}{w_0}re^{-\frac{r^2}{w_0^2}}e^{i\phi}\hat{x},
 \end{aligned} \tag{4.15}$$

este haz es llamado *dona Gaussiana linealmente polarizada* (Figura 4.6), el cual es equivalente a un modo haz Laguerre-Gauss. Las donas con polarización lineal se han utilizado para atrapar, manipular y desplazar macropartículas de $100\mu\text{m}$ a $.5\text{m}$ de distancia [33].

4.1.3. Haz Laguerre-Gauss.

Los haces Laguerre-Gauss se obtienen de resolver la ecuación de Helmholtz paraxial en coordenadas cilíndricas, para esto se propone una función de prueba de la forma

$$E(r, \phi, z) = E_0g\left(\frac{r}{w(z)}\right)e^{\frac{iq(x^2+y^2)}{2q(z)}}e^{ip(z)+l\phi}. \tag{4.16}$$

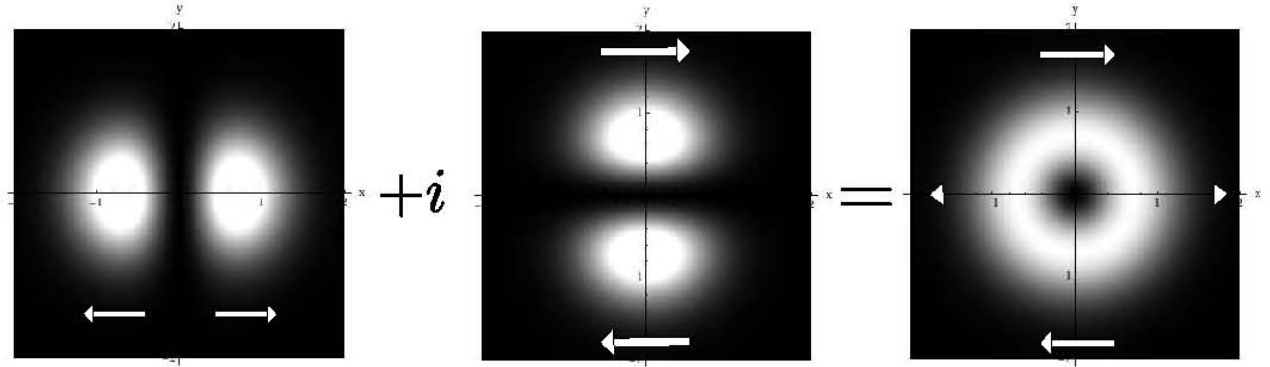


Figura 4.6: Intensidad de la superposición de los modos $H_{1,0}\hat{x}$ y $iH_{0,1}\hat{x}$ cuya combinación genera la dona linealmente polarizada.

Sustituyendo (4.16) en (4.6) y después de unos cálculos [31] se obtiene:

$$g = \left(\frac{\sqrt{2}r}{w_0} \right)^l L_p^l \left[2 \frac{r^2}{w_0^2} \right] \quad (4.17)$$

donde p y l son los órdenes del polinomio generalizado de Laguerre L_p^l .

Los modos Laguerre-Gauss tienen la forma

$$\mathbf{E}(r, \phi, z) = \frac{E_0}{w(z)} \left(\frac{\sqrt{2}r}{w_0} \right)^l L_p^l \left[\frac{2r^2}{w_0^2} \right] e^{-\frac{r^2}{w(z)^2}} e^{i\frac{qr^2}{2R(z)}} e^{il\phi} e^{-i\varphi_{pl}(z)} \hat{\mathbf{e}}, \quad (4.18)$$

donde $\varphi_{pl}(z) = (2p + l + 1) \tan^{-1}(\frac{z}{z_0})$ es el desplazamiento de la fase de Gouy [17].

En $z = 0$

$$\begin{aligned} \mathbf{E}(r, \phi) &= \frac{E_0}{w_0} \left(\frac{r\sqrt{2}}{w_0} \right)^l L_p^l \left[\frac{2r^2}{w_0^2} \right] e^{-\frac{r^2}{w_0^2}} e^{il\phi} \hat{\mathbf{e}}, \\ &= \frac{E_0}{w_0} LG_p^l \hat{\mathbf{e}}, \end{aligned} \quad (4.19)$$

donde se hemos introducido la notación $LG_p^l = \left(\frac{r\sqrt{2}}{w_0} \right)^l L_p^l \left[\frac{2r^2}{w_0^2} \right] e^{-\frac{r^2}{w_0^2}} e^{il\phi}$.

Estos haces tienen una estructura de anillos con amplitud nula en el centro y son descritos por el índice l el cual caracteriza la dependencia de la fase $e^{il\phi}$, y el índice p que determina el número de anillos concéntricos (Figura 4.7).

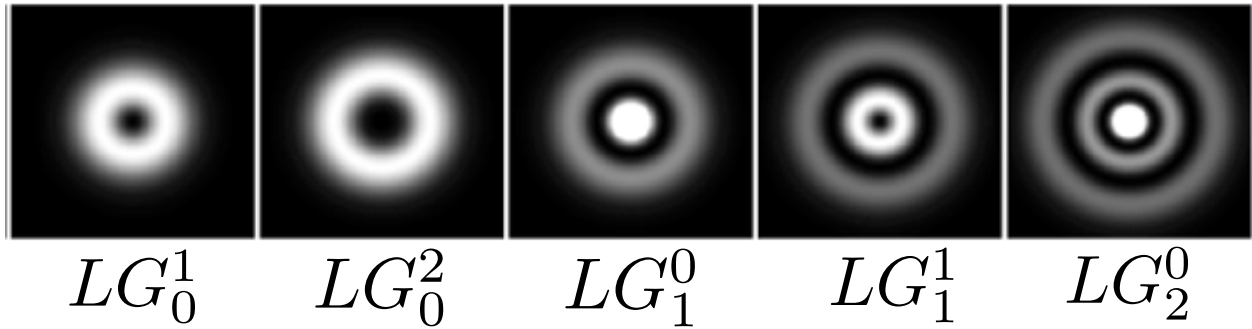


Figura 4.7: Haces Laguerre-Gauss con distinto orden.

Cuando el haz (4.19) toma los índices $p = 0$ y $l \neq 0$ se reduce a

$$\begin{aligned} \mathbf{E}(r, \phi) &= \frac{E_0}{w_0} \left(\frac{\sqrt{2}r}{w_0} \right)^l e^{-\frac{r^2}{w_0^2}} e^{il\phi} \hat{\mathbf{e}}, \\ &= \frac{E_0}{w_0} LG_0^l \hat{\mathbf{e}}, \end{aligned} \quad (4.20)$$

estos haces poseen estructuras anulares comúnmente llamadas modos de dona, con radio de dona igual a $w_0 \sqrt{l/2}$ [22].

El término más interesante de (4.18) es el que contiene la fase $l\phi$. Si se ignoran las correcciones debidas al radio de curvatura del frente de fase $R(z)$ y la fase de Gouy $\varphi_{pl}(z)$, la fase se reescribe de la forma

$$\psi(r, \phi, z) = qz + l\phi. \quad (4.21)$$

Para $l = 1$ y $l = -1$ los puntos de fase constante forman una sola hélice o superficie helicoidal. En cambio, para $l > 1$ el frente de onda consiste de l hélices intercaladas (Figura 4.8). En $r = 0$ la fase no está definida, en ese punto existe una singularidad de fase o vórtice y la amplitud de onda es cero.

Como se mencionó anteriormente, los haces Laguerre-Gauss poseen momento angular orbital (MAO). Este es diferente del momento angular de espín, el cual es asociado a la polarización circular de la luz. El MAO de la luz se ha discutido ampliamente en la literatura [20]. Puede ser entendido intuitivamente analizando la Figura 4.8, en ésta se muestra como el

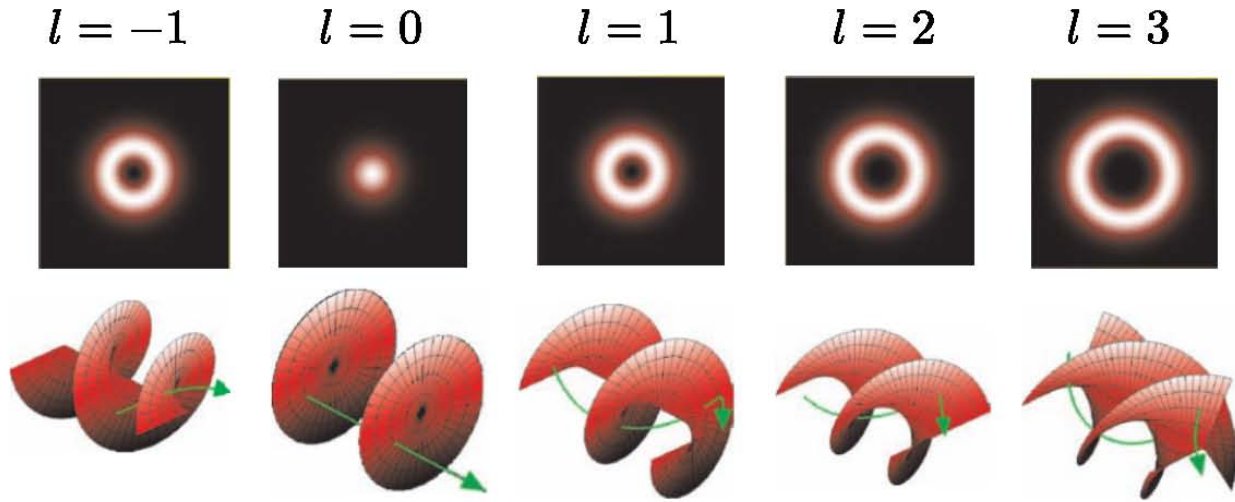


Figura 4.8: *Frentes de onda helicoidal para distintos haces LG_0^l . Las superficies helicoidales son formadas por puntos donde la onda tiene la misma fase. Adaptado de [23].*

MAO es originado de frentes de onda con fase helicoidal, en los cuales el vector de Poynting (Flecha verde) ya no es paralelo al eje del haz. En cualquier radio fijo dentro del haz, el vector de Poynting sigue una trayectoria espiral alrededor del eje. Una derivación rigurosa muestra que el MAO del haz a lo largo de la dirección de propagación es proporcional a l , el número de hélices intercaladas [20], por lo que el momento angular total J por fotón puede ser expresado como:

$$J = \hbar l + \hbar \sigma, \quad (4.22)$$

donde $\sigma = \pm 1$ representa el momento angular de espín por fotón. Al dividir (4.22) entre la energía por fotón se obtiene

$$\frac{J}{E} = \frac{\hbar(l + \sigma)}{\hbar\omega} = \frac{l + \sigma}{\omega}. \quad (4.23)$$

Capítulo 5

GSA cuadrupolar por haces Gaussianos.

"No hay que llamar ciencia
más que al conjunto de fórmulas
que siempre tiene tanto éxito.
Todo el resto es literatura."

(PAUL VALÉRY)

En el capítulo 3 se calculó la intensidad de radiación generada al incidir un haz Gaussiano en un arreglo de partículas centrosimétricas. Se comparó la predicción teórica con los resultados experimentales obtenidos para el caso de películas de NC-Si/SiO₂. La similitud de los resultados teóricos y experimentales confirmó el carácter cuadrupolar de la polarización no lineal de la película.

Debido a lo anterior, es de interés analizar la respuesta del sistema considerado ante otros haces que posean una estructura espacial inhomogénea sensible al término del gradiente en la polarización no lineal, por ejemplo, los modos Hermite-Gauss y Laguerre-Gauss. Por esta razón, Bernal et al. repiten el cálculo de la GSA en un sistema compuesto pero usando combinaciones de dos modos HG_{*m,n*} [21]. Analizan varias combinaciones transversales de estos haces y encuentran una regla de selección para combinaciones específicas de modos

Hermite-Gauss en la que existe radiación del segundo armónico en la dirección frontal, pero no consideran los modos dona ni los haces LG_p^l cuyas aplicaciones fueron discutidas en el capítulo 4.

Motivados por lo anterior, en este capítulo se calculará teóricamente la intensidad de radiación en 2ω para combinaciones de modos $\text{HG}_{m,n}$ y para modos LG_p^l . Con estos resultados, en el capítulo 6 se analizarán los patrones angulares de radiación del segundo armónico para las donas Gaussianas obtenidas en la sección 4.1.2. También, se analizará la respuesta de combinaciones de modos Laguerre-Gauss con diferentes estados de polarización y distinto momento angular.

5.1. Teoría.

En esta sección se obtendrá la intensidad de radiación por ángulo sólido generada al incidir un haz o una combinación sobre el sistema compuesto considerado, para esto se considera la polarización macroscópica (3.3)

$$\mathbf{P}^{\text{nl}} \sim \Delta' \mathbf{E} \cdot \nabla \mathbf{E},$$

y el potencial vectorial (3.8)

$$\mathbf{A}^T(\mathbf{r}) = -2iq\ell \frac{e^{2iqr}}{r} (\mathbf{P}_K^{\text{nl}})^T,$$

donde $(\mathbf{P}^{\text{nl}})_K$ es de (3.11)

$$(\mathbf{P}^{\text{nl}})_K = \Delta' \int e^{-i\mathbf{K}\cdot\mathbf{r}_{\parallel}} \mathbf{E} \cdot \nabla \mathbf{E} d\mathbf{r}_{\parallel}.$$

Sustituyendo en la intensidad de radiación por ángulo sólido (3.14)

$$\begin{aligned} \frac{dI_{2\omega}(\hat{\mathbf{n}})}{d\Omega} &= r^2 \frac{c}{8\pi} |2iq\mathbf{A}^T|^2, \\ &= \frac{c}{8\pi} (2q)^2 (2q\ell)^2 \left| (\mathbf{P}^{\text{nl}})_K^T \right|^2. \end{aligned} \quad (5.1)$$

A. GSA por un sólo modo incidente.

A continuación se obtendrá el patrón de radiación de un haz con polarización transversal $\hat{\mathbf{e}}$, para esto se desarrolló el término $\mathbf{E} \cdot \nabla \mathbf{E}$ en (3.11)

$$\mathbf{E} \cdot \nabla \mathbf{E} = \frac{1}{2} \hat{\mathbf{e}} (\hat{\mathbf{e}} \cdot \nabla E^2), \quad (5.2)$$

empleando esta expresión en (3.11)

$$(\mathbf{P}^{\text{nl}})_K = \Delta' \hat{\mathbf{e}} \hat{\mathbf{e}} \cdot \frac{1}{2} \int d\mathbf{r}_{\parallel} e^{-i\mathbf{K} \cdot \mathbf{r}_{\parallel}} \nabla E^2(\mathbf{r}_{\parallel}). \quad (5.3)$$

La integral (5.3) puede ser simplificada al integrar por partes:

$$\begin{aligned} \int d\mathbf{r}_{\parallel} e^{-i\mathbf{K} \cdot \mathbf{r}_{\parallel}} \nabla E^2 &= \int d\mathbf{r}_{\parallel} [\nabla (E^2 e^{-i\mathbf{K} \cdot \mathbf{r}_{\parallel}}) - E^2 \nabla (e^{-i\mathbf{K} \cdot \mathbf{r}_{\parallel}})], \\ &= \underbrace{\oint d^{(1)}\mathbf{S} E^2 e^{-i\mathbf{K} \cdot \mathbf{r}_{\parallel}}}_{\rightarrow 0 \text{ si } S \rightarrow \infty} - \int d\mathbf{r}_{\parallel} E^2 \nabla (e^{-i\mathbf{K} \cdot \mathbf{r}_{\parallel}}), \\ &= i\mathbf{K} \int d\mathbf{r}_{\parallel} E^2(\mathbf{r}_{\parallel}) e^{-i\mathbf{K} \cdot \mathbf{r}_{\parallel}}. \end{aligned} \quad (5.4)$$

Entonces

$$(\mathbf{P}^{\text{nl}})_K = \Delta' \hat{\mathbf{e}} (\hat{\mathbf{e}} \cdot \mathbf{K}) \frac{i}{2} \int d\mathbf{r}_{\parallel} E^2(\mathbf{r}_{\parallel}) e^{-i\mathbf{K} \cdot \mathbf{r}_{\parallel}}. \quad (5.5)$$

La ecuación (5.5) reduce el problema de la radiación generada al iluminar un sistema compuesto con un haz de estructura Gaussiana, al cálculo de la transformada de Fourier 2-D del cuadrado del campo. La integral es análoga al problema de calcular el campo lejano de una $\mathbf{P}^{\text{nl}} \propto \mathbf{E}\mathbf{E}$, es decir, el caso de un segundo armónico tipo dipolar. El factor $(\hat{\mathbf{e}} \cdot \mathbf{K})$ proviene del gradiente del campo en la polarización no lineal y se puede reducir a

$$\hat{\mathbf{e}} \cdot \mathbf{K} = \begin{cases} K \cos(\varphi - \alpha) & \text{para polarización lineal } \hat{\mathbf{e}} = \cos \alpha \hat{\mathbf{x}} + \sin \alpha \hat{\mathbf{y}}. \\ \frac{1}{\sqrt{2}}(K_x \pm iK_y) = \frac{1}{\sqrt{2}} K e^{\pm i\varphi} & \text{para polarización circular } \hat{\mathbf{e}} = \hat{\boldsymbol{\sigma}}_{\pm} = \frac{1}{\sqrt{2}}(\hat{\mathbf{x}} \pm i\hat{\mathbf{y}}). \end{cases} \quad (5.6)$$

La ecuación (5.6) muestra que al emplear el haz con polarización lineal el patrón de radiación tendrá un corte o una línea de intensidad nula correspondiente al factor $\hat{\mathbf{e}} \cdot \mathbf{K}$. En

cambio, si se trata de un haz polarizado circularmente se producirá un cero en el origen y una fase extra asociada al MAO.

B. GSA por un haz incidente con dos modos.

En esta sección se obtendrán los patrones de radiación de una superposición de dos modos Gaussianos, para esto se considera

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}_{\parallel}) = E_1(\mathbf{r}_{\parallel})\hat{\mathbf{e}}_1 + E_2(\mathbf{r}_{\parallel})\hat{\mathbf{e}}_2. \quad (5.7)$$

Desarrollando el termino $\mathbf{E} \cdot \nabla \mathbf{E}$ para la superposición anterior:

$$\begin{aligned} \mathbf{E} \cdot \nabla \mathbf{E} &= \frac{1}{2}\hat{\mathbf{e}}_1(\hat{\mathbf{e}}_1 \cdot \nabla E_1^2) + \frac{1}{2}\hat{\mathbf{e}}_2(\hat{\mathbf{e}}_2 \cdot \nabla E_2^2) + (\hat{\mathbf{e}}_1\hat{\mathbf{e}}_2 + \hat{\mathbf{e}}_2\hat{\mathbf{e}}_1) \cdot \nabla(E_1 E_2) \\ &\quad - E_2\hat{\mathbf{e}}_2(\hat{\mathbf{e}}_1 \cdot \nabla E_1) - E_1\hat{\mathbf{e}}_1(\hat{\mathbf{e}}_2 \cdot \nabla E_2), \end{aligned} \quad (5.8)$$

$$\begin{aligned} &= \frac{1}{2}\hat{\mathbf{e}}_1(\hat{\mathbf{e}}_1 \cdot \nabla E_1^2) + \frac{1}{2}\hat{\mathbf{e}}_2(\hat{\mathbf{e}}_2 \cdot \nabla E_2^2) + \frac{1}{2}(\hat{\mathbf{e}}_1\hat{\mathbf{e}}_2 + \hat{\mathbf{e}}_2\hat{\mathbf{e}}_1) \cdot \nabla(E_1 E_2) \\ &\quad + \frac{1}{2}(\hat{\mathbf{e}}_1 \times \hat{\mathbf{e}}_2) \times (E_1 \nabla E_2 - E_2 \nabla E_1). \end{aligned} \quad (5.9)$$

Empleando (5.9) en (5.5)

$$\begin{aligned} \frac{1}{\Delta'}(\mathbf{P}^{\text{nl}})_K &= \frac{i}{2}\hat{\mathbf{e}}_1(\hat{\mathbf{e}}_1 \cdot \mathbf{K}) \int d\mathbf{r}_{\parallel} E_1^2(\mathbf{r}_{\parallel})e^{-i\mathbf{K} \cdot \mathbf{r}_{\parallel}} + \frac{i}{2}\hat{\mathbf{e}}_2(\hat{\mathbf{e}}_2 \cdot \mathbf{K}) \int d\mathbf{r}_{\parallel} E_2^2(\mathbf{r}_{\parallel})e^{-i\mathbf{K} \cdot \mathbf{r}_{\parallel}} \\ &\quad + \frac{i}{2}(\hat{\mathbf{e}}_1\hat{\mathbf{e}}_2 + \hat{\mathbf{e}}_2\hat{\mathbf{e}}_1) \cdot \mathbf{K} \int d\mathbf{r}_{\parallel} E_1(\mathbf{r}_{\parallel})E_2(\mathbf{r}_{\parallel})e^{-i\mathbf{K} \cdot \mathbf{r}_{\parallel}} \\ &\quad + \frac{1}{2}(\hat{\mathbf{e}}_1 \times \hat{\mathbf{e}}_2) \times \int d\mathbf{r}_{\parallel} e^{-i\mathbf{K} \cdot \mathbf{r}_{\parallel}}(E_1 \nabla E_2 - E_2 \nabla E_1). \end{aligned} \quad (5.10)$$

Los dos primeros términos en (5.10) son equivalentes al caso de iluminar la película con un sólo modo, el tercer término involucra la mezcla de dos modos en una dirección determinada por el factor $(\hat{\mathbf{e}}_1\hat{\mathbf{e}}_2 + \hat{\mathbf{e}}_2\hat{\mathbf{e}}_1) \cdot \mathbf{K}$, el cuarto término necesita un mayor análisis para determinar su dirección.

Las ecuaciones (5.5) y (5.10) se emplearán en las siguientes secciones para calcular los patrones angulares en 2ω de modos $\text{HG}_{m,n}$ y LG_p^l .

5.2. Excitación por haces Hermite-Gauss.

5.2.1. Modo Hermite-Gauss

A continuación se considera un haz $HG_{m,n}$ en $z = 0$ con polarización transversal $\hat{\mathbf{e}}$ (4.11)

$$\mathbf{E}(x, y) = E_0 e^{-r^2/w_0^2} H_m \left[\frac{\sqrt{2}x}{w_0} \right] H_n \left[\frac{\sqrt{2}y}{w_0} \right] \hat{\mathbf{e}}. \quad (5.11)$$

Al sustituir en (5.5) y aplicando separación de variables

$$\begin{aligned} \frac{1}{\Delta'} (\mathbf{P}^{\text{nl}})_K &= \frac{i}{2} \hat{\mathbf{e}} (\hat{\mathbf{e}} \cdot \mathbf{K}) \int E^2(x, y) e^{-i\mathbf{K} \cdot \mathbf{r}_{\parallel}} d\mathbf{r}_{\parallel}, \\ &= \frac{i}{2} E_0^2 \hat{\mathbf{e}} (\hat{\mathbf{e}} \cdot \mathbf{K}) \int_{-\infty}^{\infty} \left(e^{-x^2/w_0^2} H_m \left[\frac{\sqrt{2}x}{w_0} \right] \right)^2 e^{-iK_x x} dx \times \\ &\quad \times \int_{-\infty}^{\infty} \left(e^{-y^2/w_0^2} H_n \left[\frac{\sqrt{2}y}{w_0} \right] \right)^2 e^{-iK_y y} dy. \end{aligned} \quad (5.12)$$

Empleando la identidad (A.1) en (5.12), se obtiene la polarización no lineal inducida por el haz (B.1):

$$\frac{1}{\Delta'} (\mathbf{P}^{\text{nl}})_K = \frac{i\pi w_0^2}{4} E_0^2 C_{11}(K_x, K_y) (\hat{\mathbf{e}} \cdot \mathbf{K}) e^{-(K_x^2 + K_y^2)w_0^2/8} \hat{\mathbf{e}}, \quad (5.13)$$

donde

$$C_{ij}(K_x, K_y) \equiv C_{m_i n_i, m_j n_j} = 2^{m_< + n_<} m_<! n_<! L_{m_<}^{m_> - m_<} (K_x^2 w_0^2 / 4) L_{n_<}^{n_> - n_<} (K_y^2 w_0^2 / 4), \quad (5.14)$$

con $m_>(m_<) = \max(\min)\{m_1, m_2\}$ y $n_>(n_<) = \max(\min)\{n_1, n_2\}$.

El factor $C_{11}(K_x, K_y)$ en (5.13) puede reescribirse al emplear la identidad (A.2) para $n = m$ y con el desarrollo matemático mostrado en el Apéndice B.

$$(-1)^{m+n} 2^{m+n} C_{11} = \sum_{p=0}^m \sum_{q=0}^n a(p, q) H_{2m-2p}(K_x w_0 / 2) H_{2n-2q}(K_y w_0 / 2) \quad (5.15)$$

donde $a(p, q) = (-4)^{p+q} P_{2p}(0) P_{2q}(0) H_{2p}(0) H_{2q}(0)$ con $p, q = 0, 1, 2, 3, \dots$

Esto quiere decir que el proceso de segundo armónico transforma un haz HG incidente en un haz en el segundo armónico compuesto de una combinación de HG de orden par, esto es:

$$e^{-(x^2+y^2)/w_0^2} H_{lm}(x, y) \hat{\mathbf{e}} \xrightarrow{shg} e^{-(K_x^2+K_y^2)w_0^2/8} \left[\sum_{p=0}^m \sum_{q=0}^n a(p, q) H_{2m-2p, 2n-2q}(K_x w_0/2, K_y w_0/2) \right] (\hat{\mathbf{e}} \cdot \mathbf{K}) \hat{\mathbf{e}} \quad (5.16)$$

5.2.2. Combinación de dos modos Hermite-Gauss

Ahora se obtendrá la polarización no lineal para una superposición de dos modos HG, para esto se considera una superposición de la forma:

$$\mathbf{E}(x, y) = E_{0,1} \text{HG}_{m_1, n_1} \hat{\mathbf{e}}_1 + E_{0,2} \text{HG}_{m_2, n_2} \hat{\mathbf{e}}_2. \quad (5.17)$$

Al sustituir en (5.10), se obtienen cuatro integrales distintas. Las dos primeras integrales I_1 y I_2 son equivalentes al caso de un haz Hermite-Gauss (5.13). La tercera integral I_3 , se resuelve con separación de variables y empleando la identidad (A.1)

$$I_3 = \frac{i\pi w_0^2}{4} E_{0,1} E_{0,2} 2^{m_<+n_<} m_<!n_<! e^{-K^2 w_0^2/8} \left(\frac{-iK_x w_0}{\sqrt{2}} \right)^{(m_>-m_<)} \left(\frac{-iK_y w_0}{\sqrt{2}} \right)^{(n_>-n_<)} \\ \times L_{m_<}^{m_>-m_<} [K_x^2 w_0^2/4] L_{n_<}^{n_>-n_<} [K_y^2 w_0^2/4] (\hat{\mathbf{e}}_1 \hat{\mathbf{e}}_2 + \hat{\mathbf{e}}_2 \hat{\mathbf{e}}_1) \cdot \mathbf{K}. \quad (5.18)$$

La integral restante I_4 es

$$I_4 = \frac{E_{0,1} E_{0,2}}{2} (\hat{\mathbf{e}}_1 \times \hat{\mathbf{e}}_2) \times \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} e^{-2r^2/w_0^2} H_{m_1} H_{n_1} \nabla \left(\frac{H_{m_2} H_{n_2}}{H_{m_1} H_{n_1}} \right) e^{-i(K_x x + K_y y)} dx dy, \quad (5.19)$$

donde se utilizó $E_1^2 \nabla \left(\frac{E_2}{E_1} \right) = E_1 \nabla E_2 - E_2 \nabla E_1$. La integral en (5.19) se resuelve al desarrollar el gradiente y empleando la identidad (A.1):

$$I_4 = i\pi E_{0,1} E_{0,2} (\hat{\mathbf{e}}_1 \times \hat{\mathbf{e}}_2) \times 2^{m_<+n_<} m_<!n_<! e^{-K^2 w_0^2/8} \left(\frac{-iK_x w_0}{\sqrt{2}} \right)^{(m_>-m_<)} \left(\frac{-iK_y w_0}{\sqrt{2}} \right)^{(n_>-n_<)} \\ \times L_{m_<}^{m_>-m_<} [K_x^2 w_0^2/4] L_{n_<}^{n_>-n_<} [K_y^2 w_0^2/4] \left(\frac{m_2 - m_1}{K_x} \hat{\mathbf{x}} + \frac{n_2 - n_1}{K_y} \hat{\mathbf{y}} \right). \quad (5.20)$$

Al sustituir las cuatro integrales obtenidas en la polarización no lineal (5.10):

$$\begin{aligned}
\frac{1}{\Delta'}(\mathbf{P}^{\text{nl}})_K &= \frac{i\pi w_0^2}{4} E_{0,1}^2 C_{11}(K_x, K_y)(\hat{\mathbf{e}}_1 \cdot \mathbf{K}) e^{-K^2 w_0^2/8} \hat{\mathbf{e}}_1 \\
&\quad + \frac{i\pi w_0^2}{4} E_{0,2}^2 C_{22}(K_x, K_y)(\hat{\mathbf{e}}_2 \cdot \mathbf{K}) e^{-K^2 w_0^2/8} \hat{\mathbf{e}}_2 \\
&\quad + \frac{i\pi w_0^2}{4} E_{0,1} E_{0,2} C_{12}(K_x, K_y) e^{-K^2 w_0^2/8} \left(\frac{-iK_x w_0}{\sqrt{2}} \right)^{(m_>-m_<)} \left(\frac{-iK_y w_0}{\sqrt{2}} \right)^{(n_>-n_<)} \\
&\quad \quad \quad (\hat{\mathbf{e}}_1 \hat{\mathbf{e}}_2 + \hat{\mathbf{e}}_2 \hat{\mathbf{e}}_1) \cdot \mathbf{K} \\
&\quad + i\pi E_{0,1} E_{0,2} C_{12}(K_x, K_y) e^{-K^2 w_0^2/8} \left(\frac{-iK_x w_0}{\sqrt{2}} \right)^{(m_>-m_<)} \left(\frac{-iK_y w_0}{\sqrt{2}} \right)^{(n_>-n_<)} \\
&\quad \quad \quad (\hat{\mathbf{e}}_1 \times \hat{\mathbf{e}}_2) \times \left(\frac{m_2 - m_1}{K_x} \hat{\mathbf{x}} + \frac{n_2 - n_1}{K_y} \hat{\mathbf{y}} \right). \quad (5.21)
\end{aligned}$$

El cuarto término en (5.21) es interesante ya que para combinaciones específicas de modos HG_{mn} produce radiación en la dirección frontal como se verá en el capítulo 6.

5.3. Excitación por haces Laguerre-Gauss.

5.3.1. Modo Laguerre-Gauss.

Un haz LG_p^l toma la forma en $z = 0$ (4.19)

$$\mathbf{E}(r, \phi) = \frac{E_0}{w_0} \left(\frac{r\sqrt{2}}{w_0} \right)^l L_p^l \left[\frac{2r^2}{w_0^2} \right] e^{-\frac{r^2}{w_0^2}} e^{il\phi} \hat{\mathbf{e}}. \quad (5.22)$$

Sustituyendo en la polarización (5.5)

$$\frac{1}{\Delta'}(\mathbf{P}^{\text{nl}})_K = \frac{i}{2} \hat{\mathbf{e}}(\hat{\mathbf{e}} \cdot \mathbf{K}) \int_0^\infty \int_0^{2\pi} \frac{E_0^2}{w_0^2} \left(\frac{r\sqrt{2}}{w_0} \right)^{2l} \left(L_p^l \left[\frac{2r^2}{w_0^2} \right] \right)^2 e^{-\frac{2r^2}{w_0^2}} e^{i(2l)\phi} e^{-iKr \cos(\phi-\varphi)} r d\phi dr. \quad (5.23)$$

La integral de ϕ se puede resolver usando la identidad (A.4) en (5.23):

$$\frac{1}{\Delta'}(\mathbf{P}^{\text{nl}})_K = \frac{i}{2} \hat{\mathbf{e}}(\hat{\mathbf{e}} \cdot \mathbf{K}) \int_0^\infty \frac{E_0^2}{w_0^2} \left(\frac{r\sqrt{2}}{w_0} \right)^{2l} \left(L_p^l \left[\frac{2r^2}{w_0^2} \right] \right)^2 e^{-\frac{2r^2}{w_0^2}} 2\pi i^{2l} e^{i(2l)\varphi} J_{2l}(Kr) r dr. \quad (5.24)$$

La ecuación (5.24) se reduce en el caso particular de $p = 0$ a

$$\frac{1}{\Delta'}(\mathbf{P}^{\text{nl}})_K = i\hat{\mathbf{e}}(\hat{\mathbf{e}} \cdot \mathbf{K})\pi i^{2l} e^{i(2l)\varphi} \frac{E_0^2}{w_0^2} \int_0^\infty \left(\frac{r\sqrt{2}}{w_0}\right)^{2l} e^{-\frac{2r^2}{w_0^2}} J_{2l}(Kr) r dr. \quad (5.25)$$

Empleando la identidad (A.5) en (5.25):

$$\frac{1}{\Delta'}(\mathbf{P}^{\text{nl}})_K = i\pi E_0^2 \left(\frac{w_0}{\sqrt{2}}\right)^{2l} \frac{i^{2l}}{2^{2l+2}} \hat{\mathbf{e}}(\hat{\mathbf{e}} \cdot \mathbf{K}) e^{-K^2 w_0^2/8} K^{2l} e^{i(2l)\varphi}. \quad (5.26)$$

La ecuación (5.26), es la polarización no lineal obtenida cuando se incide con un modo LG_0^l con un estado de polarización y MAO arbitrario.

Si ahora p es un entero positivo arbitrario en (5.24), se puede emplear la identidad (A.6) para obtener:

$$\begin{aligned} \frac{1}{\Delta'}(\mathbf{P}^{\text{nl}})_K &= i\hat{\mathbf{e}}(\hat{\mathbf{e}} \cdot \mathbf{K}) E_0^2 \left(\frac{w_0}{\sqrt{2}}\right)^{2l} \frac{i^{2l}}{2^{2l+2}} e^{i(2l)\varphi} \frac{K^{2l}}{p!} \Gamma(p+1+l) e^{K^2 w_0^2/8} \times \\ &\times \sum_{n=0}^p \frac{(-1)^n \Gamma(p-n+1/2) \Gamma(n+1/2)}{\Gamma(n+1+l)(p-n)!} L_{2n}^{2l}[K^2 w_0^2/4]. \end{aligned} \quad (5.27)$$

La ecuación (5.27) es la polarización no lineal obtenida al incidir con un haz de $p+1$ anillos concéntricos con polarización y MAO arbitrario.

Un caso particular de (5.27) es $p = 1$:

$$\frac{1}{\Delta'}(\mathbf{P}^{\text{nl}})_K = i\pi E_0^2 \left(\frac{w_0}{\sqrt{2}}\right)^{2l} \frac{i^{2l}}{2^{2l+2}} \hat{\mathbf{e}}(\hat{\mathbf{e}} \cdot \mathbf{K}) e^{-K^2 w_0^2/8} K^{2l} e^{i(2l)\varphi} \frac{1}{2} [(l+1) - L_2^{2l}(K^2 w_0^2/4)]. \quad (5.28)$$

5.3.2. Combinación de dos modos Laguerre-Gauss.

En esta sección se obtendrá la \mathbf{P}^{nl} generada por la superposición de dos modos LG_p^l con $p_1 = 0$ y $p_2 = 0$ en $z = 0$ de la siguiente forma:

$$\mathbf{E}(r, \phi) = \frac{E_{0,1}}{w_0} \left(\frac{\sqrt{2}r}{w_0}\right)^{|l_1|} e^{-\frac{r^2}{w_0^2}} e^{il_1\phi} \hat{\mathbf{e}}_1 + \frac{E_{0,2}}{w_0} \left(\frac{\sqrt{2}r}{w_0}\right)^{|l_2|} e^{-\frac{r^2}{w_0^2}} e^{il_2\phi} \hat{\mathbf{e}}_2. \quad (5.29)$$

Sustituyendo en (5.10) se obtienen cuatro integrales distintas, que se resuelven al considerar dos casos distintos de interés en los índices l_1 y l_2 .

En el primer caso se asume que los momentos angulares orbitales l_1 y l_2 tienen el mismo signo, es decir, $l_1 l_2 > 0$. La polarización no lineal en este caso es (Apéndice C):

$$\begin{aligned}
(\mathbf{P}^{\text{nl}})_K &\sim i\pi E_{0,1}^2 \left(\frac{w_0}{\sqrt{2}}\right)^{|2l_1|} \frac{i^{|2l_1|}}{2^{|2l_1|+2}} \hat{\mathbf{e}}_1 (\hat{\mathbf{e}}_1 \cdot \mathbf{K}) e^{-K^2 w_0^2/8} K^{|2l_1|} e^{i(2l_1)\varphi} \\
&+ i\pi E_{0,2}^2 \left(\frac{w_0}{\sqrt{2}}\right)^{|2l_2|} \frac{i^{|2l_2|}}{2^{|2l_2|+2}} \hat{\mathbf{e}}_2 (\hat{\mathbf{e}}_2 \cdot \mathbf{K}) e^{-K^2 w_0^2/8} K^{|2l_2|} e^{i(2l_2)\varphi} \\
&+ i\pi E_{0,1} E_{0,2} \left(\frac{w_0}{\sqrt{2}}\right)^{|l_1|+|l_2|} \frac{i^{|l_1|+|l_2|}}{2^{|l_1|+|l_2|+2}} (\hat{\mathbf{e}}_1 \hat{\mathbf{e}}_2 + \hat{\mathbf{e}}_2 \hat{\mathbf{e}}_1) \cdot \mathbf{K} e^{-K^2 w_0^2/8} K^{|l_1|+|l_2|} e^{i(l_1+l_2)\varphi} \\
&+ \pi (|l_2| - |l_1|) \frac{E_{0,1} E_{0,2}}{2w_0} (\hat{\mathbf{e}}_1 \times \hat{\mathbf{e}}_2) \times \hat{\sigma}_\pm e^{-K^2 w_0^2/8} \left(-\frac{iKw_0}{2\sqrt{2}}\right)^{|l_1|+|l_2|-1} e^{i(l_1+l_2\mp 1)\varphi}.
\end{aligned} \tag{5.30}$$

El segundo caso se asume que los momentos angulares orbitales l_1 y l_2 poseen signos distintos, es decir, $l_1 l_2 < 0$. La polarización no lineal en este caso es (Apéndice C):

$$\begin{aligned}
(\mathbf{P}^{\text{nl}})_K &\sim i\pi E_{0,1}^2 \left(\frac{w_0}{\sqrt{2}}\right)^{2l_1} \frac{i^{2l_1}}{2^{2l_1+2}} \hat{\mathbf{e}}_1 (\hat{\mathbf{e}}_1 \cdot \mathbf{K}) e^{-K^2 w_0^2/8} K^{2l_1} e^{i(2l_1)\varphi} \\
&+ i\pi E_{0,2}^2 \left(\frac{w_0}{\sqrt{2}}\right)^{2|l_2|} \frac{i^{2|l_2|}}{2^{2|l_2|+2}} \hat{\mathbf{e}}_2 (\hat{\mathbf{e}}_2 \cdot \mathbf{K}) e^{-K^2 w_0^2/8} K^{2|l_2|} e^{i(-2|l_2|)\varphi} \\
&+ i\pi |l_2| \frac{E_{0,1} E_{0,2}}{4} (\hat{\mathbf{e}}_1 \hat{\mathbf{e}}_2 + \hat{\mathbf{e}}_2 \hat{\mathbf{e}}_1) \cdot \mathbf{K} \left(-\frac{iKw_0}{2\sqrt{2}}\right)^{|l_1|-|l_2|} L_{|l_2|}^{|l_1|-|l_2|} \left(\frac{K^2 w_0^2}{8}\right) e^{-\frac{K^2 w_0^2}{8}} e^{i(l_1-|l_2|)\varphi} \\
&+ \pi \frac{E_{0,1} E_{0,2}}{2w_0} e^{i(l_1-|l_2|)\varphi} e^{-\frac{K^2 w_0^2}{8}} (\hat{\mathbf{e}}_1 \times \hat{\mathbf{e}}_2) \times \\
&\left[|l_2| (|l_2| + 1)! \left(-\frac{iKw_0}{2\sqrt{2}}\right)^{|l_1|-|l_2|+1} L_{|l_2|+1}^{|l_1|-|l_2|+1} \left(\frac{K^2 w_0^2}{8}\right) \hat{\sigma}_+ \right. \\
&\quad \left. - |l_1| |l_2|! \left(-\frac{iKw_0}{2\sqrt{2}}\right)^{|l_1|-|l_2|-1} L_{|l_2|}^{|l_1|-|l_2|-1} \left(\frac{K^2 w_0^2}{8}\right) \hat{\sigma}_- \right].
\end{aligned} \tag{5.31}$$

Con las ecuaciones anteriores se pueden obtener el patrón de radiación en el segundo armónico para distintas combinaciones de haces LG. Es interesante notar de la ecuación (5.30), que si se cumple que $|l_1| + |l_2| - 1$ existirá radiación en la dirección frontal. Aunque es necesario un análisis más profundo para dar una interpretación correcta a los casos anteriores. Por lo que se dejará como trabajo futuro.

Capítulo 6

Resultados.

"Es mejor saber después
de haber pensado y discutido
que aceptar los saberes
que nadie discute
para no tener que pensar."

(FERNANDO SAVATER.)

En este capítulo se presentan resultados de interés de la respuesta del sistema compuesto de nanoesferas con $\mathbf{P}^{\text{nl}} \sim (\mathbf{E} \cdot \nabla) \mathbf{E}$ para distintos casos de iluminación, por ejemplo, al emplear los haces LG_p^l o las donas Gaussianas obtenidas a partir de combinaciones de dos modos $\text{HG}_{m,n}$. Adicionalmente, se analizará el efecto de la estructura espacial inhomogénea y del vector de polarización del haz en los patrones angulares de radiación en 2ω . También se estudiará el efecto del segundo armónico cuadrupolar en el MAO y el espín de la luz.

6.1. Radiación por un haz Gaussiano.

A continuación se considerará el caso cuando se ilumina el sistema con el modo $\text{TEM}_{0,0}$ con polarización lineal o circular.

En la Figura 6.1 se muestran dos distribuciones angulares de radiación en 2ω ; como resultado de incidir un haz con $\hat{\mathbf{e}} = \hat{\mathbf{x}}$ se obtiene un haz similar al modo $HG_{1,0}\hat{\mathbf{x}}$ que corresponde al resultado obtenido experimentalmente en la película de NC-Si/SiO₂ [16], en cambio al utilizar $\hat{\mathbf{e}} = \hat{\sigma}_+$ se obtiene un modo dona similar al haz $LG_0^1\hat{\sigma}_+$.

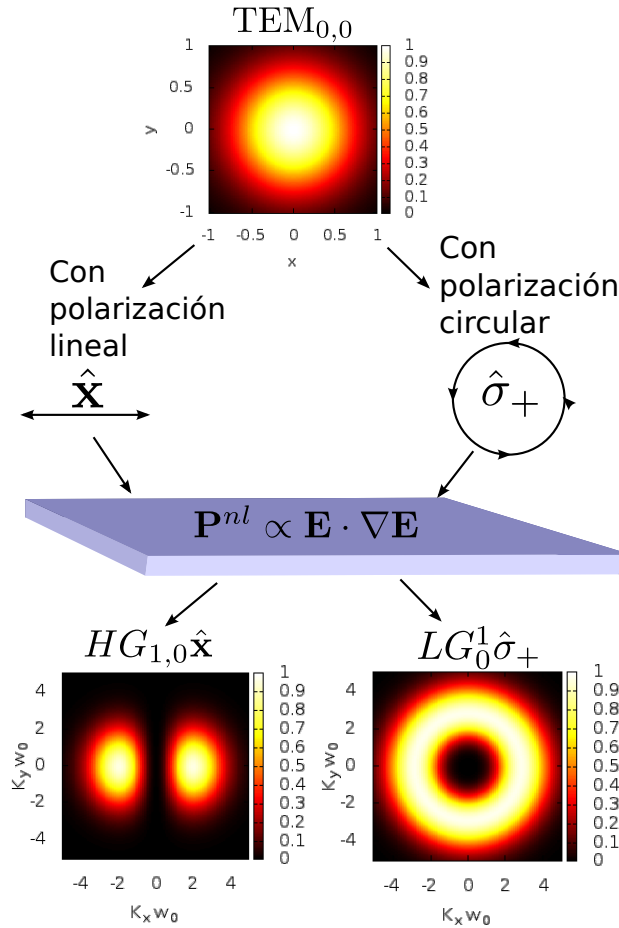


Figura 6.1: Distribución angular de la radiación en 2ω generada por un haz Gaussiano polarizado en $\hat{\mathbf{x}}$ (izquierda) y $\hat{\sigma}_+$ (derecha).

Las variaciones en las distribuciones anteriores son debidas al efecto del gradiente en el vector del haz usado en cada caso, esto puede verse del factor $(\hat{\mathbf{e}} \cdot \mathbf{K})$ en (5.6):

$$\hat{\mathbf{e}} \cdot \mathbf{K} = \begin{cases} K_x & \text{para polarización lineal } \hat{\mathbf{e}} = \hat{\mathbf{x}}. \\ \frac{1}{\sqrt{2}}(K_x + iK_y) = \frac{1}{\sqrt{2}}K e^{i\varphi} & \text{para polarización circular } \hat{\mathbf{e}} = \hat{\sigma}_+. \end{cases} \quad (6.1)$$

La ecuación anterior muestra que al incidir con polarización lineal $\hat{\mathbf{e}} = \hat{\mathbf{x}}$ el patrón angular de radiación posee una línea de intensidad nula $K_x = 0$. Mientras que al iluminar con polarización circular $\hat{\boldsymbol{\sigma}}_+$ el haz generado posee un anillo de intensidad nula en el origen y fase helicoidal $l = 1$. Esto último es debido a la conservación del momento angular total del segundo armónico $J_{2\omega}$, ya que dos fotones con MAO pueden crear un fotón con el doble del momento angular, pero dos fotones con espín no pueden crear un fotón con el doble de espín, por lo que existe una transferencia de espín a MAO resultando en un fotón con $J_{2\omega} = 1 + \sigma_+$.

Este tipo de conversión también se ha observado experimentalmente al enfocar fuertemente un láser en aire, superando su punto de ionización y creando plasma [35]. En consecuencia el segundo armónico observado se obtiene a través de gradientes de densidad del plasma. Aunque ese fenómeno físico es totalmente distinto al del sistema compuesto considerado aquí, las ecuaciones para la GSA en gases isotrópicos son similares [34], lo que sugiere explorar el caso en que el doblamiento de frecuencia vía gradientes de densidad se genere por campos con modos de mayor orden que el fundamental.

Por otro lado, los resultados obtenidos para el haz Gaussiano circularmente polarizado podrían verificarse experimentalmente en la película de NC-Si/SiO₂, lo que daría otra prueba del carácter cuadrupolar de la GSA.

6.2. Radiación por haces Hermite-Gauss.

En esta sección se considera el caso cuando se emplean modos HG_{*m,n*}, por ejemplo el haz HG_{1,0} cuya polarización no lineal inducida es (5.13):

$$(\mathbf{P}^{\text{nl}})_K \sim \frac{i\pi w_0}{2\sqrt{2}} e^{-K^2 w_0^2/8} \left(\frac{\hat{\mathbf{e}} \cdot \mathbf{K} w_0}{\sqrt{2}} \right) \left(2 - \frac{K_x^2 w_0^2}{2} \right) \hat{\mathbf{e}}. \quad (6.2)$$

En la Figura 6.2 se muestran patrones angulares generados para distintos valores de $\hat{\mathbf{e}}$.

Las variaciones originadas por el tipo de polarización no lineal pueden comprenderse al considerar una $\mathbf{P}^{\text{nl}} \propto \mathbf{E}\mathbf{E}$ inducida por este mismo modo (Figura 6.3).

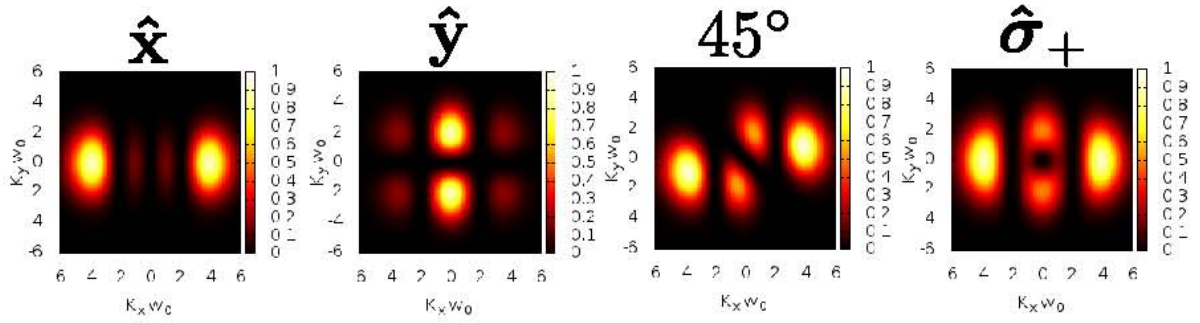


Figura 6.2: Patrones angulares de radiación en 2ω inducidos por el modo $HG_{1,0}$ para distintos estados de polarización.

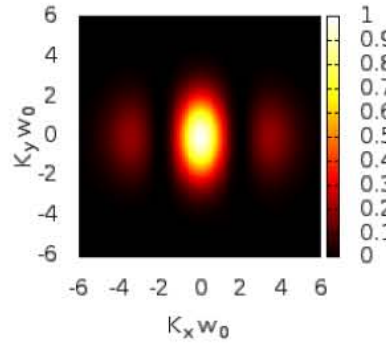


Figura 6.3: Patrón angular de radiación en 2ω obtenida al incidir con el modo $HG_{1,0}$ para una $\mathbf{P}^{nl} \propto \mathbf{E}\mathbf{E} \sim E_x^2$.

Al comparar ambas figuras se observa que el efecto del gradiente del campo produce una línea de intensidad nula en el patrón angular de la Figura 6.3, determinada por el factor $(\hat{\mathbf{e}} \cdot \mathbf{K})$ en (6.2).

Otro ejemplo interesante es cuando se utiliza el modo $HG_{1,1}$, que induce la \mathbf{P}^{nl} :

$$(\mathbf{P}^{nl})_K \sim \frac{i\pi w_0}{2\sqrt{2}} e^{-K^2 w_0^2/8} \left(\frac{\hat{\mathbf{e}} \cdot \mathbf{K} w_0}{\sqrt{2}} \right) \left(2 - \frac{K_x^2 w_0^2}{2} \right) \left(2 - \frac{K_y^2 w_0^2}{2} \right) \hat{\mathbf{e}}. \quad (6.3)$$

En la Figura 6.4 se muestran las distribuciones angulares para distintos casos de $\hat{\mathbf{e}}$, al igual que el caso anterior, si se comparan los patrones obtenidos con los de una $\mathbf{P}^{nl} \propto \mathbf{E}\mathbf{E}$ inducida por este mismo modo, se observa que los patrones del caso cuadrupolar pueden obtenerse del dipolar con unas líneas de intensidad nula determinadas por el factor $(\hat{\mathbf{e}} \cdot \mathbf{K})$ (Figura 6.5).

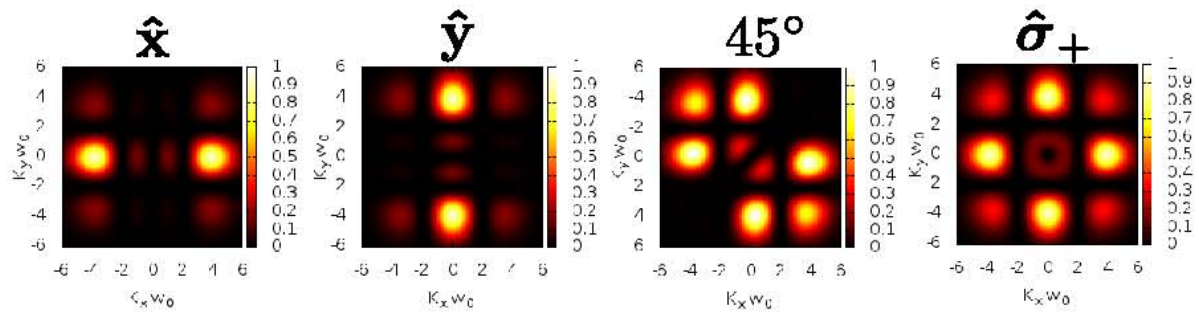


Figura 6.4: Distribuciones angulares inducidas por el modo $HG_{1,1}$ para distintos valores de \hat{e} .

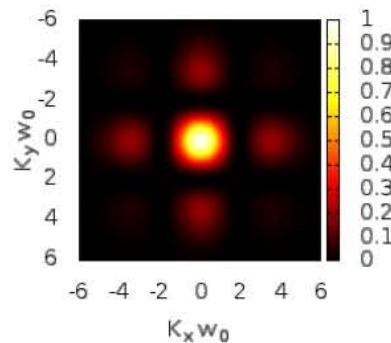


Figura 6.5: Patrón angular de radiación obtenida al emplear el modo $HG_{1,1}$ para una $\mathbf{P}^{nl} \propto \mathbf{E}\mathbf{E}$.

6.2.1. Radiación debida a los tres modos dona.

A continuación se considerará el caso cuando se utiliza alguna de las tres donas Gaussianas obtenidas al combinar modos $HG_{m,n}$ (Sección 4.1.2):

Modo dona con polarización radial.

Al incidir con la dona radialmente polarizada (4.13) se induce la polarización no lineal:

$$(\mathbf{P}^{nl})_K \sim \frac{i\pi w_0}{2\sqrt{2}} e^{-K^2 w_0^2/8} \left(4 - \frac{K^2 w_0^2}{2} \right) \left(\frac{\mathbf{K} w_0}{\sqrt{2}} \right). \quad (6.4)$$

La ecuación anterior muestra que el patrón angular de radiación tendrá dos anillos polarizados radialmente pero de sentidos contrarios (Figura 6.6), por lo que este nuevo modo obtenido

podría utilizarse para atrapar y manipular partículas.

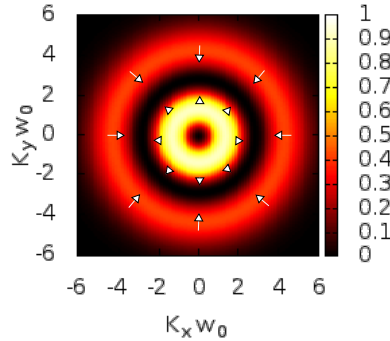


Figura 6.6: *Distribución angular en 2ω obtenida al emplear la dona Gaussiana radialmente polarizada.*

Modo dona con polarización azimutal.

Si ahora se utiliza un haz con estructura de dona azimutalmente polarizada (4.14) la \mathbf{P}^{nl} es:

$$(\mathbf{P}^{\text{nl}})_K \sim \frac{i\pi w_0}{2\sqrt{2}} e^{-K^2 w_0^2/8} \left(\frac{4\mathbf{K}w_0}{\sqrt{2}} \right). \quad (6.5)$$

Este caso es interesante ya que se observa que el estado de polarización cambia de azimutal a radial al pasar por el sistema compuesto (Figura 6.7).

Modo dona con polarización lineal.

Al emplear la dona linealmente polarizada (4.15) se induce la polarización no lineal:

$$(\mathbf{P}^{\text{nl}})_K \sim \frac{i\pi w_0}{2\sqrt{2}} e^{-K^2 w_0^2/8} \left(\frac{Kw_0}{\sqrt{2}} \right)^2 e^{2i\varphi} \left(\frac{-K_x w_0 \hat{\mathbf{x}}}{\sqrt{2}} \right). \quad (6.6)$$

La ecuación anterior muestra que la distribución angular tendrá una línea de intensidad nula determinada por K_x , además el haz transmitido tendrá un cambio de signo en su polarización lineal por lo que su estado de polarización será de $\pm \hat{\mathbf{x}}$ (Figura 6.8).

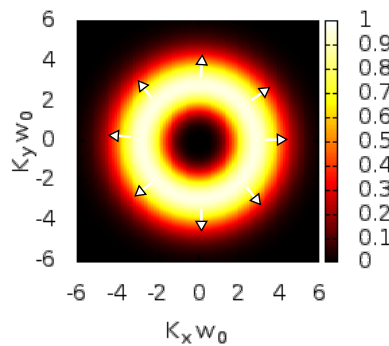


Figura 6.7: Patrón angular de radiación en 2ω obtenido al utilizar la dona azimutalmente polarizada.

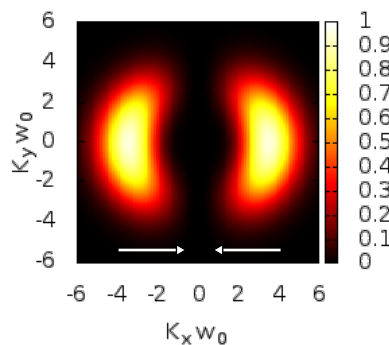


Figura 6.8: Distribución angular en 2ω obtenida al utilizar la dona linealmente polarizada.

6.2.2. Radiación por una combinación asimétrica.

Como se mencionó anteriormente Bernal et al. obtuvieron una regla de selección para combinaciones de dos modos $HG_{m,n}$ en la que existe radiación en la dirección frontal [21]. Ellos encontraron que si los modos no son colineales y sus índices cumplen con:

$$(m_{>} - m_{<}) + (n_{>} - n_{<}) = 1, \quad (6.7)$$

entonces existe radiación en la dirección frontal, lo anterior puede deducirse de los exponentes de la ecuación (5.21). Un ejemplo de (6.7) es la combinación de modos $HG_{2,0}\hat{x}$ y $HG_{1,0}\hat{y}$ cuyo patrón angular generado se observa en la Figura 6.9.

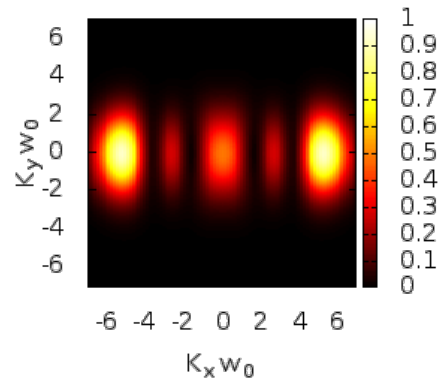


Figura 6.9: Patrón angular de radiación en 2ω generado por la combinación $HG_{2,0}\hat{x} + HG_{1,0}\hat{y}$.

Si ahora se utiliza una combinación que no cumple con la ecuación (6.7), por ejemplo, el haz generado al combinar los modos $HG_{2,0}\hat{x}$ y $HG_{1,1}\hat{y}$ se obtiene el patrón angular de la Figura 6.10.

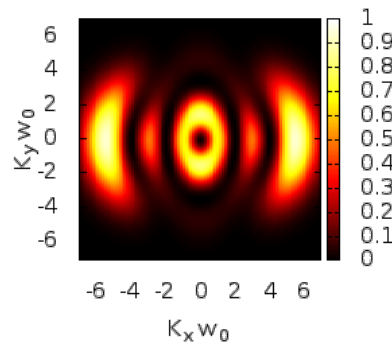


Figura 6.10: Distribución angular en el segundo armónico generado por la superposición $HG_{2,0}\hat{x} + HG_{1,1}\hat{y}$.

6.3. Radiación por haces Laguerre-Gauss

Un ejemplo interesante de radiación por un haz LG_p^l , es la \mathbf{P}^{nl} inducida por el modo LG_0^l (5.26):

$$(\mathbf{P}^{nl})_K \sim i\pi E_0^2 \left(\frac{w_0}{\sqrt{2}}\right)^{2l} \frac{i^{2l}}{2^{2l+2}} \hat{\mathbf{e}}(\hat{\mathbf{e}} \cdot \mathbf{K}) e^{-K^2 w_0^2/8} K^{2l} e^{i(2l)\varphi}.$$

Si el haz incidente posee $\hat{\mathbf{e}} = \hat{\boldsymbol{\sigma}}_+$ y se utilizan distintos valores de l , se obtienen los patrones angulares mostrados en la Figura 6.11, en la que se observa como al aumentar l el anillo crece en tamaño. De la ecuación anterior se observa que al usar $\hat{\mathbf{e}} = \hat{\boldsymbol{\sigma}}_+$ el momento angular total $J_{2\omega}$ estará compuesto de $2l + 1$ de fase helicoidal y uno de espín.

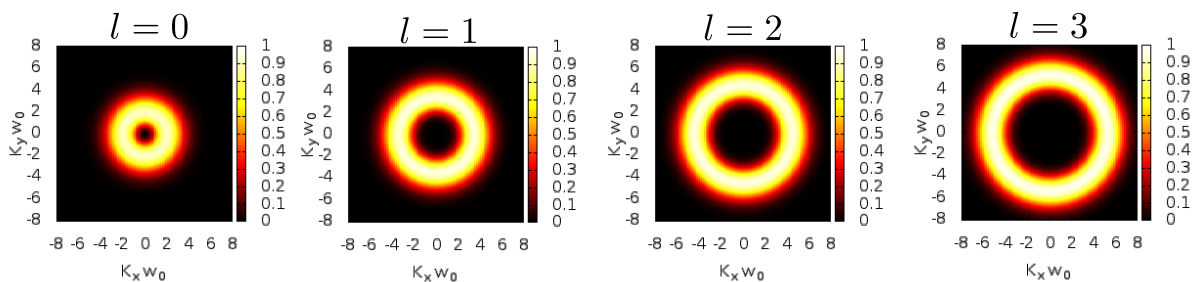


Figura 6.11: Distribuciones angulares de radiación obtenidos al utilizar el modo $LG_0^l \hat{\boldsymbol{\sigma}}_+$ para distintos valores de l .

Otro ejemplo importante es el haz $LG_{p=1}^l$, el cual induce la \mathbf{P}^{nl} (5.28):

$$(\mathbf{P}^{nl})_K \sim i\pi E_0^2 \left(\frac{w_0}{\sqrt{2}}\right)^{2l} \frac{i^{2l}}{2^{2l+2}} \hat{\mathbf{e}}(\hat{\mathbf{e}} \cdot \mathbf{K}) e^{-K^2 w_0^2/8} K^{2l} e^{i(2l)\varphi} \frac{1}{2} [(l+1) - L_2^{2l}(K^2 w_0^2/4)].$$

Si se utiliza $l = 1$ y se toman distintos valores de $\hat{\mathbf{e}}$, se obtienen las distribuciones angulares mostradas en la Figura 6.12.

Debido a que se utilizó el índice $p = 1$, las distribuciones consisten de dos anillos con una línea de intensidad nula correspondiente al factor $(\hat{\mathbf{e}} \cdot \mathbf{K})$.

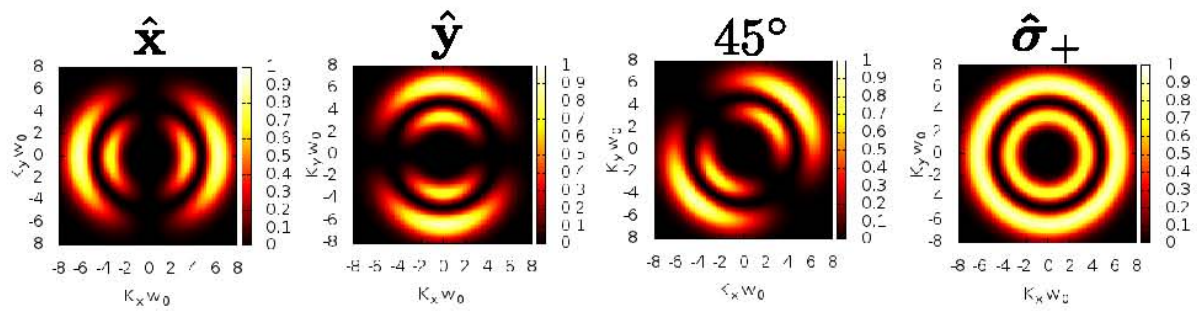


Figura 6.12: *Distribuciones angulares de radiación obtenidas al utilizar el modo LG_1^1 para distintos valores del vector \hat{e} .*

Capítulo 7

Conclusiones.

"La conclusión es que sabemos muy poco
y sin embargo es asombroso
lo mucho que conocemos.
Y más asombroso todavía
que un conocimiento tan pequeño
pueda dar tanto poder."

(BERTRAND RUSSELL.)

En este trabajo se estudia la generación óptica de segundo armónico que se produce por esparcimiento en una película delgada, homogénea de material centrosimétrico, en la que la polarización no lineal es de tipo cuadrupolar $\mathbf{E} \cdot \nabla \mathbf{E}$, cuando se ilumina con haces Gaussianos de orden superior con estructura transversal y polarización arbitrarias.

Este estudio fue motivado por recientes experimentos de esparcimiento óptico no lineal en sistemas compuestos formados por NC de Si implantados en una matriz de SiO₂, en los que se reporta una señal de GSA proveniente de las interfaces nanopartícula/matriz. La teoría electromagnética del doblamiento de frecuencia generado en un sistema compuesto desarrollada por Mochán et al. mostró que los momentos dipolares no lineales en 2ω inducidos en cada

partícula (superficie y volumen) tienen la forma no-local $\sim \mathbf{E} \cdot \nabla \mathbf{E}$, ya que la contribución cuadrática $\sim \mathbf{E}\mathbf{E}$ asociada al carácter localmente no centrosimétrico de la superficie es nula en virtud de la centrosimetría global de la esfera. Si a esto se añaden las contribuciones de los momentos cuadrupolares la polarización no lineal resultante es precisamente $\propto \mathbf{E} \cdot \nabla \mathbf{E}$. En consecuencia, lo que se tiene es un fenómeno sensible a la superficie de las nanopartículas que involucra la variación espacial del campo eléctrico $\nabla \mathbf{E}$. Con este tipo de fuente no lineal fue posible explicar el patrón de radiación armónica observado, tomando en cuenta que el campo eléctrico aplicado era el de un haz finito (Gaussiano fundamental) y no el de una onda plana [15].

Siguiendo esta teoría, en este trabajo se investigan los patrones angulares de radiación en el segundo armónico generados por la iluminación con haces Gaussianos de orden mayor. El hecho de que la respuesta no lineal dependa de $\nabla \mathbf{E}$ sugiere la aplicación de campos con una estructura espacial más compleja como los que se utilizan en múltiples estudios de nano-óptica. En particular se estudiaron haces del tipo Hermite-Gauss (HG) y Laguerre-Gauss (LG) polarizados linealmente o circularmente. Por ejemplo, al iluminar con modos donas polarizados radial o azimutalmente, combinaciones asimétricas de modos HG, modos helicoidales con espín y momento angular óptico de tipo orbital, y superposición de modos con diferentes estados de polarización.

Iluminación con haces Hermite-Gauss

Un Hermite-Gauss.

Un resultado importante al iluminar con un sólo haz $\text{HG}_{m,n}$, es que el proceso de segundo armónico transforma un modo HG en un haz de segundo armónico compuesto de una combinación de modos HG de orden par (5.16). Esto es útil e interesante, porque conociendo el modo incidente se puede inferir como será la estructura espacial del haz generado con

frecuencia doblada (Sección 5.2.1).

Otros resultados sobresalientes pueden obtenerse de la ecuación (5.13). Uno de ellos es que un haz HG con polarización lineal posee una línea de intensidad nula determinada por el factor $(\hat{\mathbf{e}} \cdot \mathbf{K})$ que proviene del gradiente en el patrón de radiación del segundo armónico. Por esta razón, al iluminar con el haz $\text{HG}_{0,0}\hat{\mathbf{x}}$ (haz finito con polarización lineal como el usado en el experimento [12]), el patrón de radiación a frecuencia doblada consiste en un modo de estructura espacial similar al $\text{HG}_{1,0}\hat{\mathbf{x}}$ (Figura 6.1 - izquierda). Por otro lado, al emplear el haz $\text{HG}_{0,0}$ polarizado circularmente ($\sigma = \pm 1$), equivalente al $\text{TEM}_{0,0}$ y al LG_0^0 , el haz generado en 2ω consiste de un anillo con intensidad nula en el centro y debido a la conservación del momento angular total en el segundo armónico ($J_{2\omega}$), el haz generado adquiere una fase extra $e^{il\phi}$ en el momento angular orbital (MAO) con $l = \pm 1$, de tal forma que el momento angular total por fotón es $J_{2\omega} = l + \sigma = \pm 2$ (Figura 6.1 - derecha). Lo anterior puede ser entendido de la siguiente manera; el proceso de segundo armónico convierte dos fotones de frecuencia ω en un fotón con frecuencia 2ω , pero si los dos fotones iniciales poseen momento angular el nuevo fotón con frecuencia doblada deberá poseer la suma del momento angular de los fotones originales. Por lo tanto un haz con espín pero sin MAO ($l=0$) produce en el segundo armónico un haz con MAO $l=1$.

En la siguiente tabla se ilustra como el proceso de GSA cuadrupolar dobla el momento angular total del haz generado cuando se utiliza el haz $\text{HG}_{0,0}$:

| ω | 2ω |
|-----------------------------|--|
| $\sigma = \pm 1$ | $\sigma = \pm 1$ |
| $l = 0$ | $l = \pm 1$ |
| $J_\omega = \sigma = \pm 1$ | $J_{2\omega} = l + \sigma = \pm 2 = 2l_\omega$ |

Los tipos anteriores de conversión de haces, se han observado en GSA pero en un mecanismo no lineal distinto que consiste en gradientes de densidad (∇n) [34]. El experimento se basa en enfocar fuertemente un láser en aire superando su punto de ionización y creando

plasma, en consecuencia el segundo armónico observado se obtiene a través de gradientes de electrones libres del plasma [35].

Superposición de dos Hermite-Gauss.

En cuanto al caso de una superposición de dos modos HG (Sección 6.2), se obtuvo una expresión para el patrón de radiación generado en 2ω (5.21), que se utilizó para describir distintos tipos de incidencia, como es el caso de los resultados obtenidos al usar uno de los tres modos dona (Sección 6.2.1) o alguna combinación asimétrica (Sección 6.2.2).

Modos dona.

Al utilizar el modo dona con polarización radial ($HG_{1,0}\hat{\mathbf{x}} + HG_{0,1}\hat{\mathbf{y}}$), el haz generado en 2ω consiste de dos donas concéntricas, la dona interior posee polarización radial hacia afuera y la dona exterior polarización radial hacia adentro (Figura 6.6). El segundo modo dona analizado es la superposición $HG_{0,1}\hat{\mathbf{x}} - HG_{1,0}\hat{\mathbf{y}}$ (modo dona con polarización azimutal), cuyo haz generado consiste en un modo dona polarizado radialmente (Figura 6.7). El tercer modo dona consiste en la superposición $HG_{1,0}\hat{\mathbf{x}} + i HG_{0,1}\hat{\mathbf{x}}$ (modo dona con polarización lineal), para este caso el haz generado en 2ω consta de dos lóbulos con polarización lineal (Figura 6.8).

Combinación asimétrica.

Otro resultado notable para la superposición de dos modos HG es que sólo ciertas combinaciones de haces no colineales cuyos modos cumplan con (6.7), tienen radiación en la dirección frontal. En otras palabras, lo anterior presenta una regla de selección para ciertas combinaciones asimétricas de los índices m y n en la que existe GSA en la dirección frontal, a diferencia de las observaciones experimentales en las que usan ondas planas o el haz Gaussiano fundamental [9, 12, 16, 37].

Iluminación con haces Laguerre-Gauss.

En cuanto al caso de iluminación con un sólo modo LG_p^l , se obtuvo una ecuación que describe el patrón de radiación generado al doble de la frecuencia (5.27). A partir de ésta se hizo variar la polarización del haz y sus modos (p y l) para describir distintos haces generados. Por ejemplo, al utilizar polarización lineal en el haz incidente el patrón en 2ω consta de $p+1$ anillos cortados por una línea de intensidad nula debida al factor $(\hat{\mathbf{e}} \cdot \mathbf{K})$. Mientras que al emplear polarización circular la estructura del haz generado posee $p+1$ anillos concéntricos (Figura 6.12).

Resulta interesante que el momento angular total de los haces LG es $J_{2\omega} = l_{2\omega} + \sigma = 2(l_\omega + \sigma)$ o $J_{2\omega} = 2J_\omega$ (Sección 6.3), en contraste con el caso dipolar que es $J_{2\omega} = 2l$ [23]. El análisis del momento angular total puede ser mejor entendido con la siguiente tabla:

| ω | 2ω |
|-------------------------|--|
| $\sigma = \pm 1$ | $\sigma = \pm 1$ |
| $l_\omega = l$ | $l_{2\omega} = 2l_\omega + \sigma$ |
| $J_\omega = l + \sigma$ | $J_{2\omega} = (2l_\omega + \sigma) + \sigma = l_{2\omega} + \sigma$ |

Esta conversión de espín a MAO que proviene del gradiente del campo, no es posible en el caso de una GSA dipolar porque violaría la conservación de $J_{2\omega}$, es decir, no se doblaría el momento angular total:

| ω | 2ω |
|--------------------------------|---|
| $\sigma = \pm 1$ | $\sigma = \pm 1$ |
| $l_\omega = l$ | $l_{2\omega} = 2l_\omega$ |
| $J_\omega = l_\omega + \sigma$ | $J_{2\omega} = 2l_\omega + \sigma \neq 2J_\omega$ |

Lo anterior resulta interesante ya que la GSA cuadrupolar ofrece la posibilidad de crear haces helicoidales con momento angular impar o par, a diferencia del caso dipolar que esta restringida a la generación de haces helicoidales con momento angular par.

Después de analizar los distintos modos de iluminación podemos concluir que la distribución angular del segundo armónico cuadrupolar es muy sensible a la estructura transversal y a la polarización del campo fundamental. Además, los resultados en $J_{2\omega}$ para un haz LG podrían verificarse experimentalmente en la película de NC-Si. Esto apoyaría la existencia del mecanismo $\mathbf{E} \cdot \nabla \mathbf{E}$ de la GSA en medios compuestos. El caso más sencillo de realizar corresponde al modo $\text{LG}_{0,0}$ con polarización circular, cuya respuesta equivale a la del haz Gaussiano fundamental mostrado en la Figura 6.1 - derecha. Por lo que al medir experimentalmente el patrón de radiación en 2ω debería observarse una estructura tipo anillo con momento angular $l = 1$ y polarización circularmente a la derecha $\sigma_+ = 1$ ($J_{2\omega} = 2$).

Los haces generados en 2ω son interesantes por sus diversas y posibles aplicaciones basadas en estos. En particular, se podría utilizar la inhomogeneidad de los nuevos haces y los cambios de polarización en áreas como nano-óptica, fotónica y atrapado de partículas. También podrían ser utilizadas sus características para identificar procesos de GSA del tipo cuadrupolar o producir una haz con frecuencia doblada de patrón y polarización deseada.

Como trabajo futuro sería interesante investigar con más detalle esta aparente interacción o conversión entre espín y el MAO de la luz. Además de analizar la respuesta del sistema considerado a otro tipo de haces Gaussianos, como los haces Bessel-Gauss [41] y Airy-Gauss [42]. Así como estudiar el campo cercano de los haces en el segundo armónico, el caso de haces Gaussianos fuertemente enfocados y la GSA cuadrupolar para distintas geometrías. Igualmente, sería interesante estudiar la GSA por gradientes de densidad y su analogía con nuestros resultados publicados [43].

Apéndice A

Identidades empleadas.

En este apéndice se mostrarán las identidades utilizadas en los cálculos analíticos realizados.

De [36] (integral 7.374.7, pág. 837):

$$\int_{-\infty}^{\infty} e^{-(x-y)^2} H_{m_1}[x] H_{m_2}[x] dx = \sqrt{\pi} 2^{m_2} m_1! y^{m_2-m_1} L_{m_1}^{m_2-m_1}[-2y^2] \quad (\text{A.1})$$

$[m_1 \leq m_2].$

Ecuación (11) de [20],

$$\sum_{k=0}^{n+m} (2i)^k P_k^{(n-k, m-k)}(0) H_{n+m-k}(x) H_k(y) = 2^{n+m} \begin{cases} (-1)^m m! (x+iy)^{n-m} L_m^{n-m}(x^2+y^2) & (n \geq m) \\ (-1)^n n! (x+iy)^{m-n} L_n^{m-n}(x^2+y^2) & (m \geq n) \end{cases} \quad (\text{A.2})$$

donde

$$P_k^{(n-k, m-k)}(0) = \frac{(-1)^k}{2^k k!} \frac{d^k}{dt^k} [(1-t)^n (1+t)^m] \Big|_{t=0}. \quad (\text{A.3})$$

Identidad de [24]:

$$\int_0^{2\pi} e^{im\phi} e^{ix \cos(\phi-\varphi)} d\phi = 2\pi i^m e^{im\varphi} J_m(x). \quad (\text{A.4})$$

De [36] (integral 6.631.4, p. 717)

$$\int_0^{\infty} x^{\nu+1} e^{-\alpha x^2} J_{\nu}(\beta x) dx = \frac{\beta^{\nu}}{(2\alpha)^{\nu+1}} e^{-\beta^2/4\alpha}, \quad [\text{Re } \alpha > 0, \text{ Re } \nu > -1]. \quad (\text{A.5})$$

De [36] (integral 7.422.1, pág. 848)

$$\int_0^\infty x^{\nu+1} e^{-\beta x^2} [L_p^{\nu/2}(\beta x^2)]^2 J_\nu(xy) dx = \frac{y^\nu}{\pi p!} \Gamma(p+1+\nu/2) (2\beta)^{-\nu-1} e^{-y^2/4\beta} \times \quad (\text{A.6})$$

$$\times \sum_{n=0}^p \frac{(-1)^n \Gamma(p-n+1/2) \Gamma(n+1/2)}{\Gamma(n+1+\nu/2) (p-n)!} L_{2n}^\nu(y^2/2\beta)$$

$$[y > 0, \operatorname{Re} \beta > 0, \operatorname{Re} \nu > -1].$$

De [36] (integral 6.632.10, pág. 718)

$$\int_0^\infty e^{-x^2} x^{2n+\mu+1} J_\mu(2x\sqrt{z}) dx = \frac{n!}{2} e^{-z} z^{\frac{1}{2}\mu} L_n^\mu(z)$$

$$[n = 0, 1, \dots; n + \operatorname{Re} \mu > -1]. \quad (\text{A.7})$$

Apéndice B

Derivación de la ecuación 5.16.

En este apéndice se mostrará que al iluminar con un sólo modo HG el proceso de GSA cuadrupolar generará un haz compuesto de la combinación de haces HG de orden par a frecuencia doblada.

Partiendo del patrón de radiación para el haz HG

$$\mathbf{E}(x, y) = E_0 e^{-r^2/w_0^2} H_m \left[\frac{\sqrt{2}x}{w_0} \right] H_n \left[\frac{\sqrt{2}y}{w_0} \right] \hat{\mathbf{e}},$$

es

$$\frac{1}{\Delta'} (\mathbf{P}^{\text{nl}})_K = \frac{i\pi w_0^2}{4} E_0^2 C_{11}(K_x, K_y) (\hat{\mathbf{e}} \cdot \mathbf{K}) e^{-(K_x^2 + K_y^2)w_0^2/8} \hat{\mathbf{e}},$$

donde

$$C_{ij}(K_x, K_y) \equiv C_{m_i n_i, m_j n_j} = 2^{m_< + n_<} m_<! n_<! L_{m_<}^{m_> - m_<} (K_x^2 w_0^2/4) L_{n_<}^{n_> - n_<} (K_y^2 w_0^2/4),$$

con $m_>(m_<) = \max(\min)\{m_1, m_2\}$ y $n_>(n_<) = \max(\min)\{n_1, n_2\}$.

De la ecuación (11) de la referencia [40],

$$\sum_{k=0}^{n+m} (2i)^k P_k^{(n-k, m-k)}(0) H_{n+m-k}(x) H_k(y) = 2^{n+m} \begin{cases} (-1)^m m! (x + iy)^{n-m} L_m^{n-m}(x^2 + y^2) & (n \geq m) \\ (-1)^n n! (x + iy)^{m-n} L_n^{m-n}(x^2 + y^2) & (m \geq n) \end{cases} \quad (\text{B.1})$$

Donde

$$P_k^{(n-k, m-k)}(0) = \frac{(-1)^k}{2^k k!} \frac{d^k}{dt^k} [(1-t)^n (1+t)^m] \Big|_{t=0} . \quad (\text{B.2})$$

Si $n = m$ y $y = 0$ la formula se reduce

$$\sum_{k=0}^{2n} (2i)^k P_k^{(n-k, n-k)}(0) H_{2n-k}(x) H_k(0) = 2^{2n} (-1)^n n! L_n^0(x^2) ; \quad (\text{B.3})$$

como $H_k(0) = 0$ para k impares, todos los términos de la suma son reales y sólo incluye polinomios de orden par.

Por lo tanto se puede escribir

$$(-1)^{l_1+m_1} 2^{l_1+m_1} C_{11} = [(-1)^{l_1} 2^{2l_1} l_1! L_{l_1}^0(K_x^2 w_0^2/4)] [(-1)^{m_1} 2^{2m_1} m_1! L_{m_1}^0(K_x^2 w_0^2/4)] \quad (\text{B.4})$$

$$= \sum_{k=0}^{2l_1} \sum_{k'=0}^{2m_1} (2i)^{k+k'} P_k^{(l_1-k, l_1-k)}(0) P_{k'}^{(m_1-k', m_1-k')}(0) \times \quad (\text{B.5})$$

$$\times H_{2l_1-k} \left[\frac{\sqrt{2}x}{w_0} \right] H_{2m_1-k'} \left[\frac{\sqrt{2}y}{w_0} \right] H_k(0) H_{k'}(0) .$$

De la formula de Rodrigues, $P^{(n-k, n-k)}(0) = P_k(0)$, con P_n un polinomio de Legendre; $P_n(0) = 0$ para n impar. Entonces,

$$\begin{aligned} (-1)^{l_1+m_1} 2^{l_1+m_1} C_{11} &= \sum_{k=0}^{2l_1} \sum_{k'=0}^{2m_1} (2i)^{k+k'} P_k(0) P_{k'}(0) H_k(0) H_{k'}(0) H_{2l_1-k} \left[\frac{\sqrt{2}x}{w_0} \right] H_{2m_1-k'} \left[\frac{\sqrt{2}y}{w_0} \right] \\ &= \sum_{p=0}^{l_1} \sum_{q=0}^{m_1} a(p, q) H_{2l_1-2p} \left[\frac{\sqrt{2}x}{w_0} \right] H_{2m_1-2q} \left[\frac{\sqrt{2}y}{w_0} \right] \end{aligned} \quad (\text{B.6})$$

donde $a(p, q) = (-4)^{p+q} P_{2p}(0) P_{2q}(0) H_{2p}(0) H_{2q}(0)$ con $p, q = 0, 1, 2, 3, \dots$

Por lo tanto, el proceso de GSA transforma un sólo haz HG incidente en un haz en el segundo armónico compuesto de una combinación de HG de orden par, esto es:

$$e^{-(x^2+y^2)/w_0^2} H_{lm}(x, y) \hat{\mathbf{e}} \xrightarrow{shg} e^{-(K_x^2+K_y^2)w_0^2/8} \left[\sum_{p=0}^m \sum_{q=0}^n a(p, q) H_{2m-2p, 2n-2q}(K_x w_0/2, K_y w_0/2) \right] (\hat{\mathbf{e}} \cdot \mathbf{K}) \hat{\mathbf{e}} \quad (\text{B.7})$$

Apéndice C

Derivación de la ecuación 5.31.

En este apéndice se mostrará el cálculo analítico realizado para obtener la polarización no lineal de una superposición de dos modos LG.

Sea una superposición de dos modos LG_p^l en $z = 0$ con índices $p_1 = 0$ y $p_2 = 0$

$$\mathbf{E}(r, \phi, 0) = \frac{E_{0,1}}{w_0} \left(\frac{\sqrt{2}r}{w_0} \right)^{|l_1|} e^{-\frac{r^2}{w_0^2}} e^{il_1\phi} \hat{\mathbf{e}}_1 + \frac{E_{0,2}}{w_0} \left(\frac{\sqrt{2}r}{w_0} \right)^{|l_2|} e^{-\frac{r^2}{w_0^2}} e^{il_2\phi} \hat{\mathbf{e}}_2. \quad (\text{C.1})$$

Desarrollando el operador:

$$\begin{aligned} \mathbf{E} \cdot \nabla \mathbf{E} &= \frac{1}{2} \hat{\mathbf{e}}_1 (\hat{\mathbf{e}}_1 \cdot \nabla E_1^2) + \frac{1}{2} \hat{\mathbf{e}}_2 (\hat{\mathbf{e}}_2 \cdot \nabla E_2^2) + \frac{1}{2} (\hat{\mathbf{e}}_1 \hat{\mathbf{e}}_2 + \hat{\mathbf{e}}_2 \hat{\mathbf{e}}_1) \cdot \nabla (E_1 E_2) \\ &\quad + \frac{1}{2} (\hat{\mathbf{e}}_1 \times \hat{\mathbf{e}}_2) \times E_1^2 \nabla \left(\frac{E_2}{E_1} \right), \end{aligned} \quad (\text{C.2})$$

donde se utilizó que $E_1 \nabla E_2 - E_2 \nabla E_1 = E_1^2 \nabla \left(\frac{E_2}{E_1} \right)$.

$i^{-m}J_{-m}(x) = i^m J_m(x) = i^{|m|}J_{|m|}(x)$. La integral se reduce a

$$I_3 = \frac{i}{2}(\widehat{\mathbf{e}}_1\widehat{\mathbf{e}}_2 + \widehat{\mathbf{e}}_2\widehat{\mathbf{e}}_1) \cdot \mathbf{K} \int_0^\infty \frac{E_{0,1}E_{0,2}}{w_0^2} \left(\frac{\sqrt{2}r}{w_0}\right)^{|l_1|+|l_2|+1} e^{-\frac{2r^2}{w_0^2}} \left[2\pi(-1)^{|l_1+l_2|} J_{|l_1+l_2|}(Kr) e^{i(l_1+l_2)\varphi} \right] dr. \quad (\text{C.6})$$

Empleando la identidad (6.631.4 del Gradshteyn):

$$\int_0^\infty x^{\nu+1} e^{-\alpha x^2} J_\nu(\beta x) dx = \frac{\beta^\nu}{(2\alpha)^{\nu+1}} e^{-\frac{\beta^2}{4\alpha}} \quad (\text{C.7})$$

$[Re \alpha > 0, Re \nu > -1],$

con $l_1 l_2 > 0$, entonces $|l_1 + l_2| = |l_1| + |l_2|$. La integral I_3 es:

$$I_3 = i\pi E_{0,1}E_{0,2} \left(\frac{w_0}{\sqrt{2}}\right)^{|l_1|+|l_2|} \frac{i^{|l_1|+|l_2|}}{2^{|l_1|+|l_2|+2}} (\widehat{\mathbf{e}}_1\widehat{\mathbf{e}}_2 + \widehat{\mathbf{e}}_2\widehat{\mathbf{e}}_1) \cdot \mathbf{K} e^{-K^2 w_0^2/8} K^{|l_1|+|l_2|} e^{i(l_1+l_2)\varphi}. \quad (\text{C.8})$$

La integral I_4 es:

$$I_4 = \frac{1}{2}(\widehat{\mathbf{e}}_1 \times \widehat{\mathbf{e}}_2) \times \int_0^\infty \int_0^{2\pi} \frac{E_{0,1}E_{0,2}}{w_0^2} e^{-\frac{2r^2}{w_0^2}} \left(\frac{\sqrt{2}r}{w_0}\right)^{|2l_1|} e^{i2l_1\phi} \nabla \left[\left(\frac{\sqrt{2}r}{w_0}\right)^{(|l_2|-|l_1|)} e^{i(l_2-l_1)\phi} \right] e^{-iKr \cos(\phi-\varphi)} r d\phi dr. \quad (\text{C.9})$$

Para resolver I_4 , se desarrollará el término del gradiente en coordenadas cilíndricas:

$$\begin{aligned} \nabla \left[\left(\frac{\sqrt{2}r}{w_0}\right)^{|l_2|-|l_1|} e^{i(l_2-l_1)\phi} \right] &= \left(\frac{\partial}{\partial r} \widehat{\mathbf{r}} + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial \phi} \widehat{\phi} \right) \left[\left(\frac{\sqrt{2}r}{w_0}\right)^{|l_2|-|l_1|} e^{i(l_2-l_1)\phi} \right], \\ &= \left[(|l_2| - |l_1|) \left(\frac{\sqrt{2}r}{w_0}\right)^{|l_2|-|l_1|-1} \left(\frac{\sqrt{2}}{w_0}\right) e^{i(l_2-l_1)\phi} \right] \widehat{\mathbf{r}} + \frac{1}{r} \left[i(l_2 - l_1) \left(\frac{\sqrt{2}r}{w_0}\right)^{|l_2|-|l_1|} e^{i(l_2-l_1)\phi} \right] \widehat{\phi}, \\ &= \left[\left(\frac{\sqrt{2}r}{w_0}\right)^{|l_2|-|l_1|-1} \left(\frac{\sqrt{2}}{w_0}\right) e^{i(l_2-l_1)\phi} \right] \left((|l_2| - |l_1|) \widehat{\mathbf{r}} + i(l_2 - l_1) \widehat{\phi} \right), \\ &= (|l_2| - |l_1|) \left[\left(\frac{\sqrt{2}r}{w_0}\right)^{|l_2|-|l_1|-1} \left(\frac{\sqrt{2}}{w_0}\right) e^{i(l_2-l_1)\phi} \right] \left(\widehat{\mathbf{r}} + i \operatorname{sgn}(l_1) \widehat{\phi} \right), \end{aligned}$$

donde se utilizó que $\operatorname{sgn}(l_2) = \operatorname{sgn}(l_1)$.

Si se reescriben los operadores unitarios en coordenadas cartesianas, empleando: $\hat{\mathbf{r}} = \cos \phi \hat{\mathbf{x}} + \sin \phi \hat{\mathbf{y}}$ y $\hat{\phi} = -\sin \phi \hat{\mathbf{x}} + \cos \phi \hat{\mathbf{y}}$, se obtiene que $\hat{\mathbf{r}} \pm i\hat{\phi} = e^{\mp i\phi}(\hat{\mathbf{x}} \pm i\hat{\mathbf{y}})$. Por lo tanto, el gradiente se puede reescribir de la forma:

$$\nabla \left[\left(\frac{\sqrt{2}r}{w_0} \right)^{|l_2|-|l_1|} e^{i(l_2-l_1)\phi} \right] = (|l_2|-|l_1|) \left(\frac{\sqrt{2}r}{w_0} \right)^{(|l_2|-|l_1|)-1} \left(\frac{\sqrt{2}}{w_0} \right) e^{i(l_2-l_1)\phi} e^{-i \operatorname{sgn}(l_1)\phi} (\hat{\mathbf{x}} + i \operatorname{sgn}(l_1)\hat{\mathbf{y}}).$$

Al sustituir el término anterior en I_4 :

$$I_4 = \frac{1}{2}(\hat{\mathbf{e}}_1 \times \hat{\mathbf{e}}_2) \times (\hat{\mathbf{x}} + i \operatorname{sgn}(l_1)\hat{\mathbf{y}}) \int_0^\infty \int_0^{2\pi} \frac{E_{0,1}E_{0,2}}{w_0^2} (|l_2| - |l_1|) \left(\frac{\sqrt{2}r}{w_0} \right)^{l_2+l_1-1} \frac{\sqrt{2}}{w_0} e^{-2\frac{r^2}{w_0^2}} e^{i(l_1+l_2-\operatorname{sgn}(l_1))\phi} e^{-iKr \cos(\phi-\varphi)} r \, d\phi \, dr.$$

Resolviendo la integral de ϕ con (C.5):

$$I_4 = \frac{1}{2}(\hat{\mathbf{e}}_1 \times \hat{\mathbf{e}}_2) \times (\hat{\mathbf{x}} + i \operatorname{sgn}(l_1)\hat{\mathbf{y}}) \int_0^\infty \frac{E_{0,1}E_{0,2}}{w_0^2} (|l_2| - |l_1|) \left(\frac{\sqrt{2}r}{w_0} \right)^{l_2+l_1} e^{-\frac{r^2}{w_0^2}} 2\pi i^{|l_1+l_2-\operatorname{sgn}(l_1)|} (-1)^{|l_1+l_2-\operatorname{sgn}(l_1)|} J_{|l_1+l_2-\operatorname{sgn}(l_1)|}(Kr) e^{i(l_1+l_2-\operatorname{sgn}(l_1))\varphi} \, dr.$$

Al considerar que $|l_1 + l_2 - \operatorname{sgn}(l_1)| = |l_1| + |l_2| - 1$, ya que $\operatorname{sgn}(l_2) = \operatorname{sgn}(l_1)$, y empleando (C.7) en la integral anterior:

$$I_4 = i\pi (|l_2| - |l_1|) \frac{E_{0,1}E_{0,2}}{w_0^2} \left(-\frac{iw_0}{2\sqrt{2}} \right)^{|l_1|+|l_2|} (\hat{\mathbf{e}}_1 \times \hat{\mathbf{e}}_2) \times (\hat{\mathbf{x}} + i \operatorname{sgn}(l_1)\hat{\mathbf{y}}) e^{i(l_1+l_2-\operatorname{sgn}(l_1))\varphi} K^{|l_1|+|l_2|-1} e^{-K^2 w_0^2/8}. \quad (\text{C.10})$$

Finalmente, al sumar las cuatro integrales se encuentra que la $(\mathbf{P}^{\text{nl}})_{\mathbf{K}}$ para $l_1 l_2 > 0$ es

$$\begin{aligned} (\mathbf{P}^{\text{nl}})_{\mathbf{K}} &\sim i\pi E_{0,1}^2 \left(\frac{w_0}{\sqrt{2}} \right)^{|2l_1|} \frac{i^{|2l_1|}}{2^{|2l_1|+2}} \hat{\mathbf{e}}_1 (\hat{\mathbf{e}}_1 \cdot \mathbf{K}) e^{-K^2 w_0^2/8} K^{|2l_1|} e^{i(2l_1)\varphi} \\ &+ i\pi E_{0,2}^2 \left(\frac{w_0}{\sqrt{2}} \right)^{|2l_2|} \frac{i^{|2l_2|}}{2^{|2l_2|+2}} \hat{\mathbf{e}}_2 (\hat{\mathbf{e}}_2 \cdot \mathbf{K}) e^{-K^2 w_0^2/8} K^{|2l_2|} e^{i(2l_2)\varphi} \\ &+ i\pi E_{0,1} E_{0,2} \left(\frac{w_0}{\sqrt{2}} \right)^{|l_1|+|l_2|} \frac{i^{|l_1|+|l_2|}}{2^{|l_1|+|l_2|+2}} (\hat{\mathbf{e}}_1 \hat{\mathbf{e}}_2 + \hat{\mathbf{e}}_2 \hat{\mathbf{e}}_1) \cdot \mathbf{K} e^{-K^2 w_0^2/8} K^{|l_1|+|l_2|} e^{i(l_1+l_2)\varphi} \\ &+ \pi (|l_2| - |l_1|) \frac{E_{0,1}E_{0,2}}{2w_0} (\hat{\mathbf{e}}_1 \times \hat{\mathbf{e}}_2) \times \hat{\sigma}_\pm e^{-K^2 w_0^2/8} \left(-\frac{iKw_0}{2\sqrt{2}} \right)^{|l_1|+|l_2|-1} e^{i(l_1+l_2\mp 1)\varphi}. \end{aligned} \quad (\text{C.11})$$

A continuación se calculará la $(\mathbf{P}^{\text{nl}})_{\mathbf{K}}$ para otro caso de interés.

b) Caso $l_1 l_2 < 0$.

Ahora se considerará el caso donde los modos tienen los índices $l_1 > 0$ y $l_2 < 0$. Al aplicar lo anterior en (C.3), las dos primeras integrales I'_1 y I'_2 se resuelven de manera similar al caso a). La tercera integral I'_3 se reescribe como:

$$I'_3 = \frac{i}{2} (\hat{\mathbf{e}}_1 \hat{\mathbf{e}}_2 + \hat{\mathbf{e}}_2 \hat{\mathbf{e}}_1) \cdot \mathbf{K} \int_0^\infty \int_0^{2\pi} \frac{E_{0,1} E_{0,2}}{w_0^2} \left(\frac{\sqrt{2}r}{w_0} \right)^{l_1+|l_2|} e^{-\frac{2r^2}{w_0^2}} e^{i(l_1-|l_2|)\phi} e^{-iKr \cos(\phi-\varphi)} r d\phi dr.$$

Utilizando (C.5) en la ecuación anterior:

$$I'_3 = \frac{i}{2} (\hat{\mathbf{e}}_1 \hat{\mathbf{e}}_2 + \hat{\mathbf{e}}_2 \hat{\mathbf{e}}_1) \cdot \mathbf{K} \int_0^\infty \frac{E_{0,1} E_{0,2}}{w_0^2} \left(\frac{\sqrt{2}r}{w_0} \right)^{l_1+|l_2|+1} e^{-\frac{2r^2}{w_0^2}} [2\pi(-1)^{l_1-|l_2|} i^{l_1-|l_2|} J_{|l_1-|l_2|}(Kr) e^{i(l_1-|l_2|)\varphi}] dr.$$

Si ahora se emplea la identidad (6.631.10 pág. 718 Gradshteyn):

$$\int_0^\infty e^{-x^2} x^{2n+\mu+1} J_\mu(2x\sqrt{z}) = \frac{n!}{2} e^{-z} z^{\frac{1}{2}\mu} L_n^\mu(z) \quad (\text{C.12})$$

$$[n = 0, 1, \dots; n + \text{Re } \mu > -1].$$

donde $x = \frac{\sqrt{2}r}{w_0}$, $\mu = l_1 - |l_2|$, $n = |l_2|$ y $\sqrt{z} = \frac{Kw_0}{2\sqrt{2}}$. I'_3 se reduce a:

$$I'_3 = i\pi |l_2| \frac{E_{0,1} E_{0,2}}{4} (\hat{\mathbf{e}}_1 \hat{\mathbf{e}}_2 + \hat{\mathbf{e}}_2 \hat{\mathbf{e}}_1) \cdot \mathbf{K} \left(-\frac{iKw_0}{2\sqrt{2}} \right)^{|l_1-|l_2||} L_{|l_2|}^{|l_1-|l_2||} \left(\frac{K^2 w_0^2}{8} \right) e^{-\frac{K^2 w_0^2}{8}} e^{i(l_1-|l_2|)\varphi}. \quad (\text{C.13})$$

La integral I'_4 es:

$$I'_4 = \frac{1}{2} (\hat{\mathbf{e}}_1 \times \hat{\mathbf{e}}_2) \times \int_0^\infty \int_0^{2\pi} \frac{E_{0,1} E_{0,2}}{w_0^2} e^{-\frac{2r^2}{w_0^2}} \left(\frac{\sqrt{2}r}{w_0} \right)^{|2l_1|} e^{i2l_1\phi} \nabla \left[\left(\frac{\sqrt{2}r}{w_0} \right)^{(|l_2|-l_1)} e^{i(-|l_2|-l_1)\phi} \right] e^{-iKr \cos(\phi-\varphi)} r d\phi dr. \quad (\text{C.14})$$

Al desarrollar el gradiente:

$$\begin{aligned} \nabla \left[\left(\frac{\sqrt{2}r}{w_0} \right)^{(|l_2|-l_1)} e^{i(-|l_2|-l_1)\phi} \right] &= \left(\frac{\sqrt{2}r}{w_0} \right)^{(|l_2|-l_1)} e^{i(-|l_2|-l_1)\phi} [(|l_2| - l_1) \hat{\mathbf{r}} + i(-|l_2| - l_1) \hat{\phi}], \\ &= \left(\frac{\sqrt{2}r}{w_0} \right)^{(|l_2|-l_1)} e^{i(-|l_2|-l_1)\phi} [|l_2| e^{i\phi} (\hat{\mathbf{x}} - i\hat{\mathbf{y}}) - l_1 e^{-i\phi} (\hat{\mathbf{x}} + i\hat{\mathbf{y}})]. \end{aligned} \quad (\text{C.15})$$

Al sustituir (C.15) en (C.14) y utilizando la identidad (C.5) para la integral azimutal:

$$I'_4 = \pi \frac{E_{0,1}E_{0,2}}{w_0^2} (\hat{\mathbf{e}}_1 \times \hat{\mathbf{e}}_2) \times \int_0^\infty e^{-\frac{2r^2}{w_0^2}} \left(\frac{\sqrt{2}r}{w_0} \right)^{(|l_2|+l_1)} \left[|l_2| i^{|l_1-|l_2|+1} e^{i(l_1-|l_2|+1)\varphi} J_{|l_1-|l_2|+1}(-Kr) (\hat{\mathbf{x}} + i\hat{\mathbf{y}}) - l_1 i^{|l_1-|l_2|-1} e^{i(l_1-|l_2|-1)\varphi} J_{|l_1-|l_2|-1}(-Kr) (\hat{\mathbf{x}} - i\hat{\mathbf{y}}) \right] dr. \quad (\text{C.16})$$

Al emplear la identidad (C.12):

$$I'_4 = \pi \frac{E_{0,1}E_{0,2}}{2w_0} e^{i(l_1-|l_2|)\varphi} e^{-\frac{\kappa^2 w_0^2}{8}} (\hat{\mathbf{e}}_1 \times \hat{\mathbf{e}}_2) \times \left[|l_2| (|l_2| + 1)! \left(\frac{iKw_0}{2\sqrt{2}} \right)^{|l_1-|l_2|+1} L_{|l_2|+1}^{|l_1-|l_2|+1} \left(\frac{K^2 w_0^2}{8} \right) \hat{\sigma}_+ - l_1 |l_2|! \left(-\frac{iKw_0}{2\sqrt{2}} \right)^{|l_1-|l_2|-1} L_{|l_2|}^{|l_1-|l_2|-1} \left(\frac{K^2 w_0^2}{8} \right) \hat{\sigma}_- \right]. \quad (\text{C.17})$$

Sumando las cuatro integrales se obtiene $(\mathbf{P}^{\text{nl}})_K$ para el caso $l_1 l_2 < 0$:

$$\begin{aligned} (\mathbf{P}^{\text{nl}})_K &\sim i\pi E_{0,1}^2 \left(\frac{w_0}{\sqrt{2}} \right)^{2l_1} \frac{i^{2l_1}}{2^{2l_1+2}} \hat{\mathbf{e}}_1 (\hat{\mathbf{e}}_1 \cdot \mathbf{K}) e^{-K^2 w_0^2/8} K^{2l_1} e^{i(2l_1)\varphi} \\ &+ i\pi E_{0,2}^2 \left(\frac{w_0}{\sqrt{2}} \right)^{2|l_2|} \frac{i^{2|l_2|}}{2^{2|l_2|+2}} \hat{\mathbf{e}}_2 (\hat{\mathbf{e}}_2 \cdot \mathbf{K}) e^{-K^2 w_0^2/8} K^{2|l_2|} e^{i(-2|l_2|)\varphi} \\ &+ i\pi |l_2| \frac{E_{0,1}E_{0,2}}{4} (\hat{\mathbf{e}}_1 \hat{\mathbf{e}}_2 + \hat{\mathbf{e}}_2 \hat{\mathbf{e}}_1) \cdot \mathbf{K} \left(-\frac{iKw_0}{2\sqrt{2}} \right)^{|l_1-|l_2||} L_{|l_2|}^{|l_1-|l_2||} \left(\frac{K^2 w_0^2}{8} \right) e^{-\frac{\kappa^2 w_0^2}{8}} e^{i(l_1-|l_2|)\varphi} \\ &+ \pi \frac{E_{0,1}E_{0,2}}{2w_0} e^{i(l_1-|l_2|)\varphi} e^{-\frac{\kappa^2 w_0^2}{8}} (\hat{\mathbf{e}}_1 \times \hat{\mathbf{e}}_2) \times \\ &\left[|l_2| (|l_2| + 1)! \left(-\frac{iKw_0}{2\sqrt{2}} \right)^{|l_1-|l_2|+1} L_{|l_2|+1}^{|l_1-|l_2|+1} \left(\frac{K^2 w_0^2}{8} \right) \hat{\sigma}_+ \right. \\ &\quad \left. - l_1 |l_2|! \left(-\frac{iKw_0}{2\sqrt{2}} \right)^{|l_1-|l_2|-1} L_{|l_2|}^{|l_1-|l_2|-1} \left(\frac{K^2 w_0^2}{8} \right) \hat{\sigma}_- \right]. \end{aligned}$$

Bibliografía

- [1] T. H. Maiman, *Nature*. **187** 4736, 493 (1960).
- [2] Robert W. Boyd *Nonlinear Optics*, 2nd ed. (Academic Press).
- [3] P.N. Butcher and D. Cotter, *The elements of nonlinear optics* (Cambridge University Press 1990).
- [4] P. Franken. et al. *Phys. Rev. Lett.* **7** (4), 118 (1961).
- [5] W. L. Mochan and J. A. Maytorena, *Epioptics-8. Theory of surface second harmonic generation* (2006).
- [6] Y. R. Shen, *Annual Review of Physical Chemistry*. **40**, 329 (1989).
- [7] K. B. Eisenthal, *Annual Review of Physical Chemistry*. **43**, 627 (1992).
- [8] H. Wang et al. *Phys. Rev. A* **259** (15) (1996).
- [9] N. Yang, W. E. Angerer and A. G. Yodh, *Phys. Rev. Letters* **87**, 103902 (2001)
- [10] Sandip et al. *Applied Physics Letters* **68**, (10), 1377 (1996)
- [11] Johannes et al. *Silicon Nanocrystals: Size Matters. Adv. Mater.* **17** (7): 795 (2005)
- [12] Y. Jiang, L. Sun y M. C. Downer, *Applied Physics Letters* **78**, (6): 776. (2001).
- [13] J. I. Dadap et al. *Phys. Rev. Letters* **83**, 4045 (1999).

-
- [14] Vera L. Brudny, Bernardo S. Mendoza and W. Luis Mochán, Phys. Rev. B **62**, 11152 (2000)
- [15] W. Luis Mochán, Jesús A. Maytorena, Bernardo S. Mendoza, and Vera L. Brudny, Phys. Rev. B **68**, 085318 (2003).
- [16] P. Figliozzi et al. Phys. Rev. Letters **94**, 047401 (2005).
- [17] Bahaa E., A. Saleh *Fundamentals of photonics* (Wiley 1991).
- [18] Qiwen Zhan, Advances in optics and photonics, **1** 1-57 (2009).
- [19] Sonja Franke-Arnold, L. Allen and Miles J. Padgett, Lasers and Photons. Rev **2**, No. 4 299. (2008).
- [20] L. Allen, Stephen M. Barnett and Miles J. Padgett, *Optical Angular Momentum* (Institute of Physics Publishing Bristol and Philadelphia 2003).
- [21] Roberto Bernal, Jesús A. Maytorena, Phys. Rev. B **70**, 125420 (2004).
- [22] Enrique J. Galvez, Am. J. Phys. **74**, (4): 355 (2006).
- [23] Miles Padgett, Johannes Courtial and Les Allen. Physics Today, May. 35, (2004).
- [24] Lukas Novotny and Bert Hecht, *Principles of nanoptics*, Chap 3-4 (Cambridge 2006).
- [25] Bingzhong Huo et al, J. Opt. Soc. Am. B **28**, 0740-3324 (11): (2011).
- [26] Akihiko Ohtsu Opt. Communications **283**, 3831 (2010).
- [27] Y. Kozawa and S. Sato Appl. Phys. B **98**, 851 (2010).
- [28] Leonard Eyges *The Classical Electromagnetic Field*. (Dover, 1980).

-
- [29] C. F. Bohren and D.R. Huffmann, Absorption and scattering of light by small particles (Wiley 1998).
- [30] Wolfgang K. H. Panofsky and Melba Phillips *Classical Electricity And Magnetism* 2nd ed. (Dover 2005)
- [31] H. Kogelnik and T. Li, Applied Optics **5**, (10): 1550 (1966).
- [32] H. E. Helseth, Opt. Commun. **212** 342 (2002).
- [33] Vladlen G. Shvedov et al. Phys. Rev. Letters 105, 118103 (2010).
- [34] D. S. Bethune, Phys. Rev. A **23**, 3139 (1981).
- [35] Martynas Beresna et al. Appl. Phys. Lett. **95**, 121502 (2009).
- [36] I.S. Gradshteyn and I.M. Ryzhik. *Table of Integrals, Series, and Products*. 4th ed. (Academic Press, NY, 1965).
- [37] J. Martorell, R. Vilaseca and R. Corbalán, Phys. Rev. A **55**, 4520 (1997).
- [38] A. Yariv, *Quantum Electronics*, 3rd ed. (Wiley, New York, 1989).
- [39] A. Wirth et al. Phys. Stat. Sol. C **5**, (8): 2662 (2008).
- [40] L. Allen *et al.*, Phys. Rev. A **45**, 8185 (1992).
- [41] Angela Dudley et. al. Optics and photonics news, 23 June (2013).
- [42] Miguel A. Bandres et al. Optics and photonics news, 32 June (2013).
- [43] Miguel G. Mandujano and Jesús A. Maytorena, Phys. Rev. A **88**, 0238111 (2013).