

Resonancias plasmónicas dipolares en nanoelipsoides: análisis de contribuciones interbanda e intrabanda en el régimen cuasiestático

Luna González, D. Larissa¹, Urrutia Anguiano, Jonathan A.² y Reyes Coronado, Alejandro³

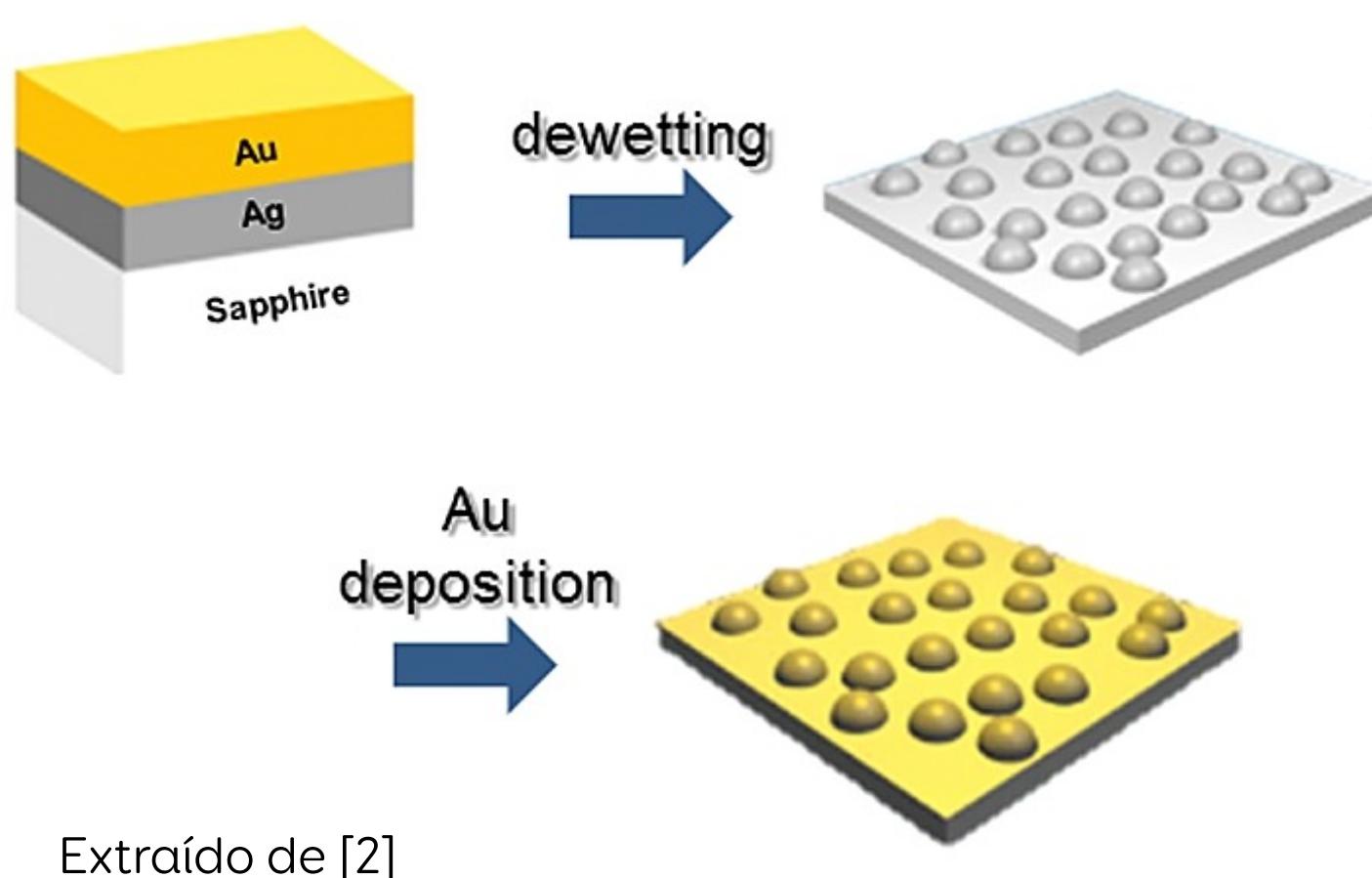
Departamento de Física, Facultad de Ciencias, Universidad Nacional Autónoma de México

¹dana.larissalg@ciencias.unam.mx, ²jaurrutia.95@ciencias.unam.mx, ³coronado@ciencias.unam.mx

Resumen

Las **resonancias plasmónicas** han cobrado un gran interés en áreas como la óptica, la magnetoóptica y la fotónica, debido a sus potenciales aplicaciones en biodetección, telecomunicaciones y microscopía. En el caso particular de **nanoelipsoides** iluminados en el espectro visible, las resonancias plasmónicas dipolares se pueden distinguir de otro tipo de excitaciones al resolver analíticamente el problema del esparcimiento y la absorción de luz en el **régimen cuasiestático**. La distinción entre el origen de las posibles resonancias se realiza al emplear una formulación de la función dieléctrica que separa las contribuciones electrónicas **intrabanda** e **interbanda** del material que conforma al nanoelipsoide. En este trabajo, se estudia teóricamente la respuesta plasmónica de nanoelipsoides de materiales reales, en la aproximación cuasiestática, mediante la solución analítica de la ecuación de Laplace en coordenadas elipsoidales confocales. Se emplean modelos reportados en la literatura ajustados a datos experimentales de la **función dieléctrica** para distintos materiales con el fin de identificar los dos tipos de contribuciones, y se incorporan **correcciones por tamaño**, relevantes en la nanoescala. A partir del cálculo de la sección transversal de extinción y la comparación con el caso límite de una nanoesfera, se identifican las frecuencias de excitación de la resonancia plasmónica dipolar y sus corrimientos espectrales en función de parámetros geométricos del nanoelipsoide. Asimismo, se discute el efecto de las contribuciones intrabanda en la función dieléctrica sobre la resonancia plasmónica dipolar excitada en el nanoelipsoide. Los resultados permiten identificar si las resonancias encontradas tienen un origen plasmónico.

1. Fabricación de metasuperficies



Extraido de [2]

El método **dewetting** es una técnica de fabricación de **metasuperficies** a partir de películas delgadas que ofrece una alternativa económica y escalable frente a otras técnicas convencionales, aunque genera nanoislas de **geometría irregular** [1]. Estas irregularidades pueden describirse de manera **aproximada** mediante **elipsoides**, lo que motiva su estudio como un modelo realista para analizar las propiedades plasmónicas.

2. Elipsoides en la aproximación cuasiestática

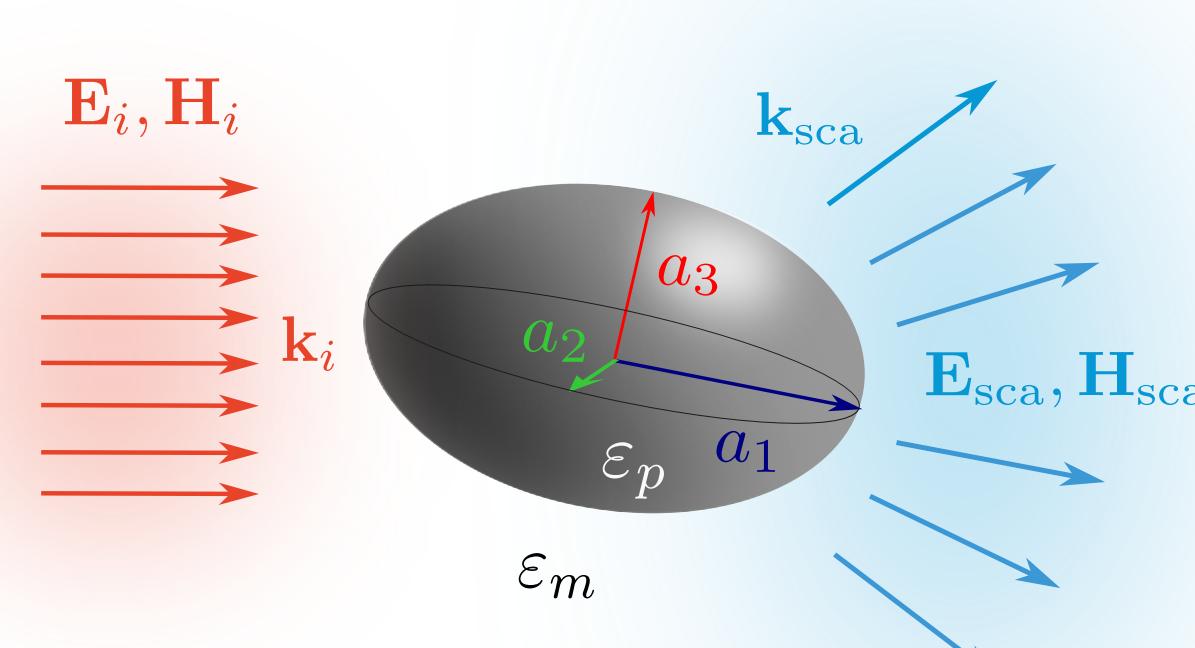
El problema de esparcimiento de luz por una partícula elipsoidal arbitraria en la **aproximación cuasiestática** consiste en resolver la **ecuación de Laplace** para un elipsoide con permitividad eléctrica ϵ_p , embebido en un medio caracterizado por una función dieléctrica ϵ_m . El elipsoide con semiejes a_j (con $j = 1, 2, 3$) y razón de aspecto $AR = a_1/a_3$ se ilumina con una longitud de onda λ tal que $\lambda \gg a_1 \geq a_2 \geq a_3$. De tal forma, se obtienen **tres resonancias plasmónicas dipolares** en términos de las polarizabilidades α_j y del volumen $V_{\text{elipsoide}}$ del elipsoide [3]

$$\alpha_j = V_{\text{elipsoide}} \frac{\epsilon_p - \epsilon_m}{\epsilon_m + L_j(\epsilon_p - \epsilon_m)},$$

donde L_j son los **factores geométricos** determinados por la excentricidad del elipsoide. En muestras reales con partículas orientadas aleatoriamente, la respuesta óptica se obtiene como un **promedio** de la excitación lo largo de los tres semiejes del elipsoide, es decir [3]

$$\langle C_{\text{abs}} \rangle = \frac{k}{3} \text{Im}\{\alpha_1 + \alpha_2 + \alpha_3\}, \quad \langle C_{\text{sca}} \rangle = \frac{k^4}{3(6\pi)} (|\alpha_1|^2 + |\alpha_2|^2 + |\alpha_3|^2),$$

$$\langle C_{\text{ext}} \rangle = \langle C_{\text{abs}} \rangle + \langle C_{\text{sca}} \rangle.$$



3. Modelado del material

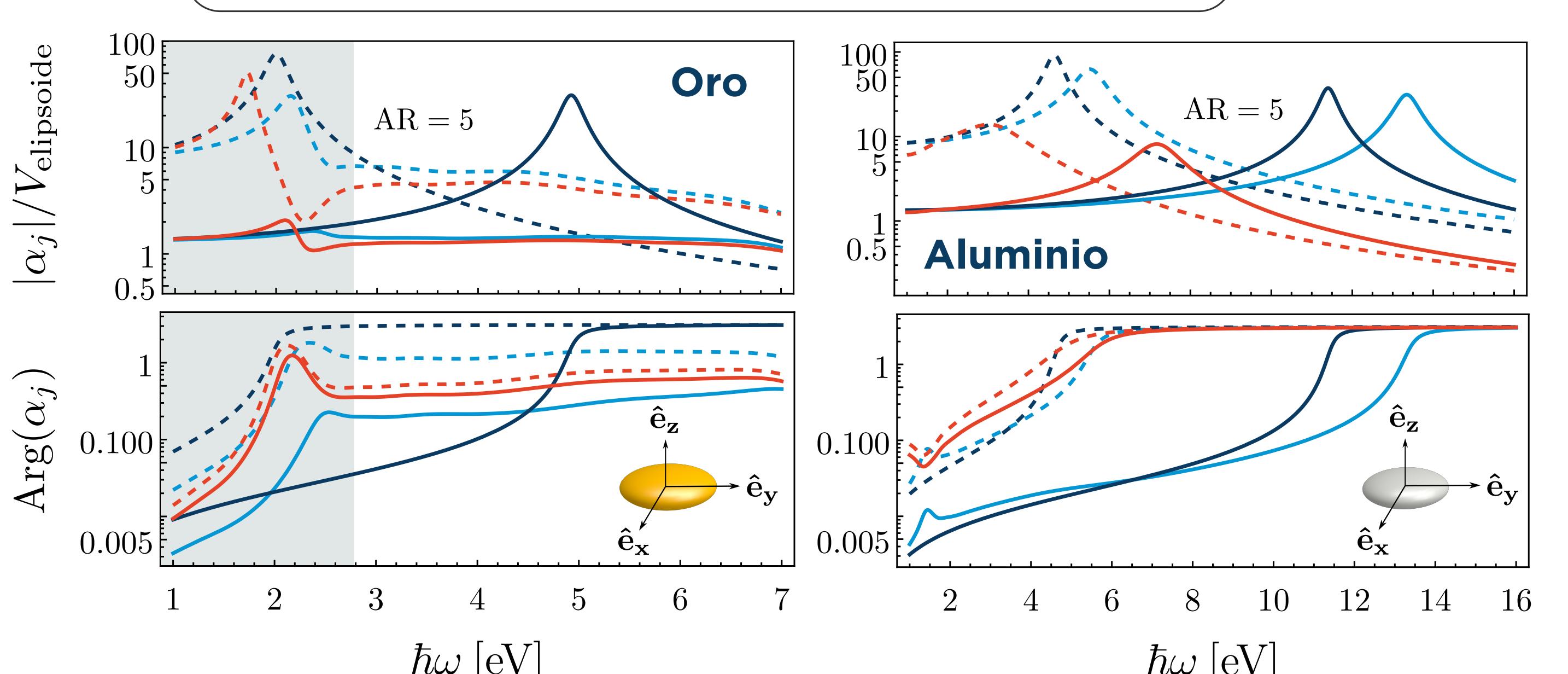
La **respuesta óptica** de un material se describe mediante la **función dieléctrica** $\epsilon(\omega)$ que considera contribuciones electrónicas **intrabanda** (electrones libres) e **interbanda** [4]. En nanopartículas con dimensiones menores al **caminio libre medio** de los electrones, los electrones interactúan con la superficie, por lo que se realiza una corrección γ_{ef} a la contribución interbanda, que depende de la **geometría** y del **tamaño** de la nanopartícula [4]

$$\epsilon(\omega) = 1 - \underbrace{\frac{\omega_p^2}{\omega(\omega + i\gamma_{\text{ef}})}}_{\epsilon_{\text{intra}}(\omega)} + \epsilon_{\text{inter}}(\omega),$$

- ω_p : Frecuencia de plasma
 γ_0 : Constante fenomenológica de amortiguamiento
 γ_{ef} : Constante fenomenológica de amortiguamiento efectiva
 v_F : Rapidez de Fermi
 A : Parámetro fenomenológico

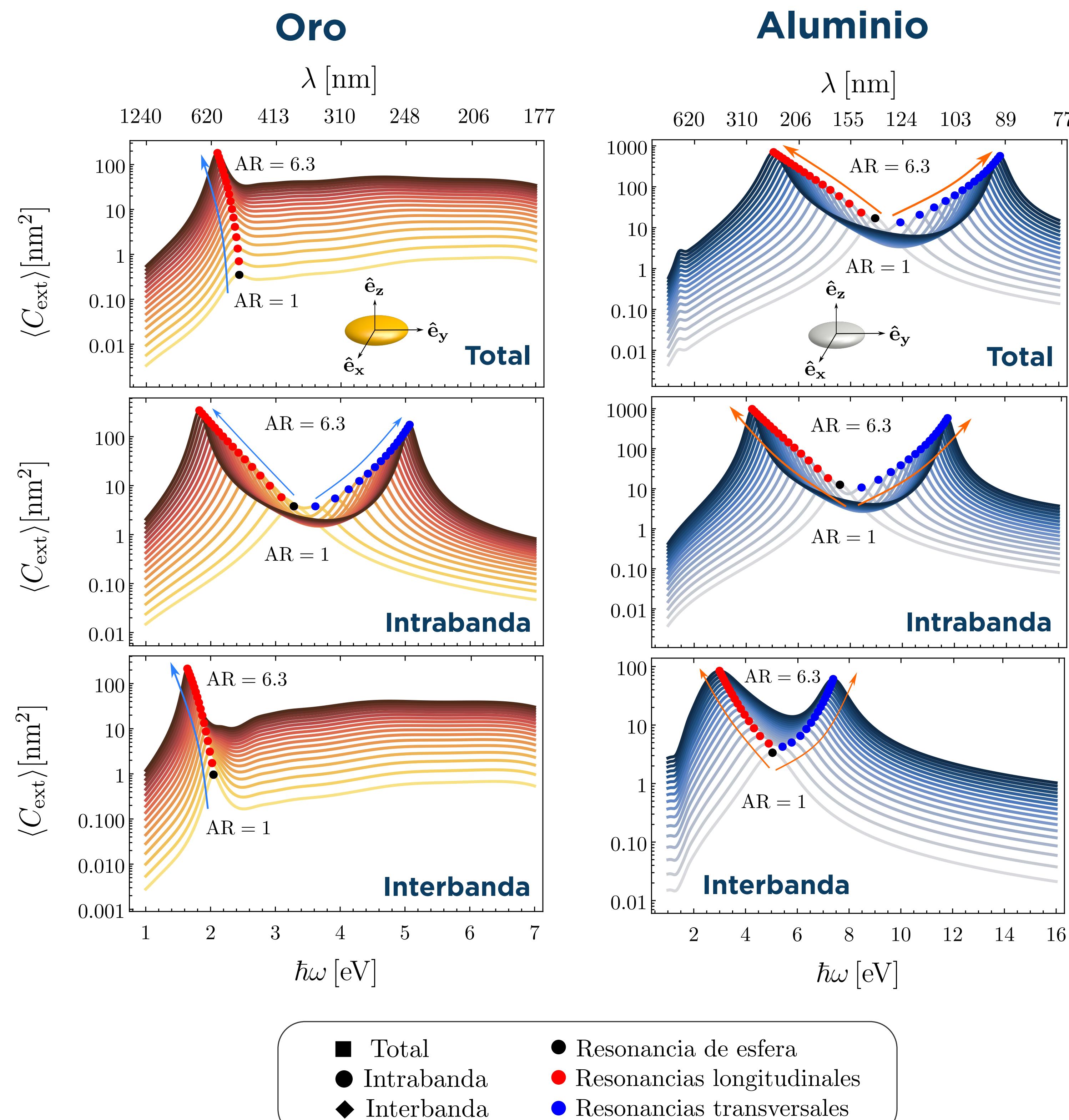
donde $\gamma_{\text{ef}} = \gamma_0 + A \frac{v_F}{L}$, donde L para elipsoides es $L = \sqrt[3]{abc}$ [5].

— Total — Intrabanda — Interbanda
-- Longitudinal (semieje a_1) — Transversal (semieje a_3)



4. Resultados

● Resonancia de esfera ● Resonancias longitudinales ● Resonancias transversales



5. Conclusiones

- En el **oro**, al considerar únicamente los efectos **intrabanda**, sólo es posible distinguir las **resonancias transversales**, debido a la acumulación de máximos de polarizabilidad en el rango de 1-2.8 eV.
→ Al incluir las transiciones **interbanda**, las **resonancias longitudinales** presentan un **corrimiento hacia el azul** a partir de AR=3.6; para valores menores de AR, se observa un **corrimiento hacia el rojo**.
→ En el **aluminio**, al incorporar los efectos **intrabanda** hay un **corrimiento hacia el azul** tanto en las **resonancias longitudinales** como en las **transversales**.
→ En ambos materiales, al aumentar AR, las **resonancias longitudinales** se desplazan hacia el **rojo**, mientras que las **transversales** lo hacen hacia el **azul**.

Más información acerca de la función dieléctrica en

- [1] J. P. Cuanalo-Fernández, et al. *The Journal of Physical Chemistry C*, **128**(27), 2024
[2] N. Gatzit, et al. *Acta Materialia*, **129**, 2017
[3] C. F. Bohren y D. R. Huffman. *Absorption and scattering of light by small particles*. 2008
[4] C. Noguez. *The Journal of Physical Chemistry C*, **111**(10), 2007
[5] N. M. Figueiredo, et al. *Plasmonics*, **15**(2), 2020

Agradecimientos al proyecto PAPIIT-UNAM IN101825 y a la Facultad de Ciencias, UNAM

