



**UNIVERSIDAD NACIONAL AUTÓNOMA DE MÉXICO
POSGRADO EN CIENCIAS FÍSICAS**

**TRANSFERENCIA DE MOMENTO ANGULAR DE ELECTRONES RÁPIDOS A
NANOPARTÍCULAS**

TESIS

QUE PARA OPTAR POR EL GRADO DE:
DOCTOR EN CIENCIAS (FÍSICA)

PRESENTA:

JOSÉ ÁNGEL CASTELLANOS REYES

TUTOR:

DR. ALEJANDRO REYES CORONADO
FACULTAD DE CIENCIAS, UNAM

MIEMBROS DEL COMITÉ TUTOR:

DR. RUBÉN GERARDO BARRERA Y PÉREZ
INSTITUTO DE FÍSICA, UNAM
DR. RAÚL PATRICIO ESQUIVEL SIRVENT
INSTITUTO DE FÍSICA, UNAM

CIUDAD DE MÉXICO, SEPTIEMBRE DE 2021

*A Brenda, Milo y Kenji, los amores de mi vida.
A mi padre, por el amor, el apoyo y el ejemplo.
A EDAM, por los clips y la tensión superficial.
A Pepito, por tantos sueños, amor y valentía.
A todos los que me han amado y he amado.*

«*But still try, for who knows what is possible?*»
Michael Faraday.

«*De ilusiones así va uno viviendo.*»
Julio Cortázar.

Índice general

Agradecimientos	7
Resumen	9
Abstract	11
1. Introducción	13
2. Teoría y métodos	17
2.1. Conservación del momento angular en electrodinámica	18
2.2. Transferencia de momento angular de un electrón rápido a una nanopartícula esférica . .	20
2.3. Campos electromagnéticos producidos por un electrón viajando con velocidad constante .	27
2.4. Campos electromagnéticos esparcidos por una nanopartícula esférica	28
2.4.1. Expresiones esféricas de los campos electromagnéticos externos y esparcidos	29
2.5. Transferencia de momento angular de un electrón rápido a nanopartículas con forma arbitraria	33
3. Transferencia de momento angular a nanopartículas pequeñas	35
3.1. Transferencia de momento angular de un electrón rápido a una nanopartícula pequeña arbitraria	35
3.2. Nanopartículas pequeñas esféricas con respuesta electromagnética homogénea e isótropa .	39
3.2.1. Respuesta temporal de nanopartículas pequeñas	41
4. Resultados y discusión	43
4.1. Respuesta temporal de nanopartículas pequeñas esféricas de oro y de aluminio	44
4.2. Transferencia de momento angular a nanopartículas esféricas de distintos radios	45

4.2.1.	Transferencia de momento angular en el límite de partícula pequeña: nanopartículas de aluminio, oro y bismuto	46
4.2.2.	Validez del límite de partícula pequeña para el cálculo de la TMA: nanopartículas de 1 nm de radio de aluminio, oro y bismuto	51
4.2.3.	Transferencia de momento angular a nanopartículas de aluminio, oro y bismuto de 5 nm de radio	53
4.2.4.	Transferencia de momento angular a nanopartículas grandes: el caso del aluminio tipo Drude	55
4.3.	Discusión sobre la magnitud de los resultados de la transferencia de momento angular	57
Conclusiones y perspectivas		59
Apéndice A		
Cuadraturas y cubaturas		63
4.4.	Cuadraturas gaussianas	63
4.4.1.	Cuadratura de Gauss-Legendre	64
4.4.2.	Cambio de intervalo de integración	66
4.4.3.	Un método más general para obtener la cuadratura de Gauss-Legendre	66
4.4.4.	Otras cuadraturas gaussianas	70
4.4.5.	Estimación del error: Reglas anidadas y Cuadratura de Gauss-Kronrod	70
4.5.	Algoritmos adaptativos de integración	71
4.6.	Intervalos semiinfinitos	72
4.6.1.	Cuadratura de doble exponencial	72
4.7.	Cubaturas	74
4.7.1.	Estimación del error: Reglas nulas	74
4.7.2.	CUHRE	75
Apéndice B		
Solución de Mie extendida		77
4.8.	Campo electromagnético producido por el electrón	78
4.9.	Campo electromagnético esparcido por la nanopartícula	80
Apéndice C		
Efecto de las correcciones por tamaño a $\varepsilon(\omega)$ en la TMA		83
Apéndice D		
Diferencias con un método previo para el límite de partícula pequeña		85
Apéndice E		
Convergencia de los cálculos de la TMA		89

Apéndice F	
Tiempos de cómputo de la TMA	93
Lista de publicaciones	97
Referencias	99

Agradecimientos

Agradezco a mi tutor, el Dr. Alejandro Reyes Coronado, y a mi comité tutor, el cual, además de mi tutor, incluye al Dr. Rubén Gerardo Barrera y Pérez y al Dr. Raúl Patricio Esquivel Sirvent, por su apoyo, su guía y sus consejos durante mi doctorado y en el trabajo de investigación que ha permitido la escritura de esta tesis.

A los miembros del jurado: Dr. Felipe Pérez Rodríguez, Dr. Carlos Ramírez Ramos, Dra. Karen Patricia Volke Sepúlveda, Dra. Citlali Sánchez Aké y Dr. Alejandro Reyes Coronado, por el tiempo que dedicaron a la revisión de mi tesis y por sus valiosos comentarios y sugerencias.

Al Consejo Nacional de Ciencia y Tecnología, por otorgarme la beca 481497 para la realización de mis estudios de doctorado.

A la Universidad Nacional Autónoma de México (UNAM), el Posgrado en Ciencias Físicas (PCF) de la UNAM, la Facultad de Ciencias (FC) de la UNAM y el Instituto de Física de la UNAM, por todo el apoyo que me han brindado. En particular, agradezco al Programa de Apoyo a los Estudios de Posgrado y al proyecto DGAPA-UNAM PAPIIT IN114919, por los apoyos para adquirir equipos de cómputo y para la asistencia a las ediciones LX (en Monterrey, Nuevo León) y LXI (en Puebla, Puebla) del Congreso Nacional de Física, así como al META 2019 - 10th International Conference on Metamaterials, Photonic Crystals and Plasmonics (en Lisboa, Portugal). También agradezco a la FC por apoyarme con una licencia de seis meses con goce de sueldo para la escritura de este trabajo.

A los científicos con los que he tenido la fortuna de colaborar en la escritura de mis artículos: Rubén Gerardo Barrera y Pérez, Alejandro Reyes Coronado, Carlos Alberto Maciel Escudero y Jesús Castrejón Figueroa.

A Brenda Paola Martínez Vázquez por su gran amor, su apoyo y por compartir la vida conmigo.

A mi padre, por todo su apoyo y su cariño en esta etapa de mi vida.

Finalmente, agradezco a mi familia, mis amigos y mis compañeros por su apoyo y su presencia tan importante en mi vida.

Resumen

La manipulación de objetos en la micro y nanoescala es importante hoy en día debido a sus potenciales aplicaciones tecnológicas. En particular, se han llevado a cabo esfuerzos importantes en el desarrollo de técnicas no destructivas para atrapar, mover y ensamblar micro y nanoestructuras. Para este propósito, el uso de microscopios para estudiar micro y nanoobjetos ha sido relevante.

Actualmente, uno de los microscopios más utilizados para el estudio de nanoestructuras es el microscopio electrónico de transmisión (TEM por sus siglas en inglés). Se ha encontrado que los haces de electrones con los que el TEM produce sus imágenes tienen el potencial de convertirse en herramientas efectivas para la manipulación de nanoestructuras. Desde el año 2004, se han investigado los movimientos que los haces de electrones de TEM inducen en nanopartículas. Se ha observado que el haz de electrones ejerce fuerzas y torcas sobre las nanopartículas. Lo anterior se ha aprovechado para controlar exitosamente el movimiento de nanopartículas mediante haces de electrones. Esta técnica se conoce como pinzas electrónicas, en analogía a las pinzas ópticas.

Para aprovechar al máximo el potencial de las pinzas electrónicas, es necesario comprender los principios físicos de la interacción entre las nanopartículas y los haces de electrones del TEM. Esto ha motivado el desarrollo de investigaciones teóricas sobre la dinámica de nanopartículas debida a haces de electrones. La mayoría de los trabajos teóricos sobre pinzas electrónicas se han enfocado en el estudio de la fuerza y el momento lineal que el haz de electrones transfiere a las nanopartículas, quedando pendiente el estudio de la torca y la transferencia de momento angular.

Con el advenimiento de las tecnologías de vórtices electrónicos (haces de electrones con momento angular orbital bien definido), el estudio de la dinámica angular que los haces de electrones producen en las nanopartículas se ha vuelto indispensable. Por lo tanto, los avances de las pinzas electrónicas y los vórtices electrónicos requieren un estudio detallado de las características rotacionales en la interacción entre haces de electrones y nanopartículas.

En este trabajo se presenta un estudio teórico del momento angular que un haz de electrones sin vorticidad de un TEM transfiere a una nanopartícula. Partiendo de un modelo electrodinámico clásico, se obtienen expresiones para la transferencia de momento angular de un electrón del haz de un TEM a

una NP esférica con una respuesta electromagnética homogénea e isótropa. En particular, se estudia el caso de nanopartículas de aluminio, oro y bismuto de diferentes tamaños, barriendo la nanoescala.

Se desarrolla una metodología numérica que permite estudiar la transferencia de momento angular a nanopartículas de cualquier tamaño. En particular, es posible estudiar el caso de nanopartículas de hasta 50 nm de radio con una respuesta tipo Drude, como es el caso del aluminio considerado en este trabajo. Sin embargo, el estudio de materiales con respuestas electromagnéticas más realistas, como lo son el oro y el bismuto considerados, exceden las capacidades computacionales disponibles. Entonces, en este trabajo se presentan resultados para nanopartículas de aluminio (tipo Drude) de 1 nm, 5 nm, 10 nm, 20 nm y 50 nm de radio, mientras que para las nanopartículas de oro y bismuto sólo se presentan resultados para radios de 1 nm, 5 nm y 10 nm (para 10 nm solamente se presentan resultados en el límite de partícula pequeña).

Se encuentra que el momento angular transferido siempre se localiza en la dirección perpendicular tanto a la trayectoria del electrón como a la línea que une el centro de la nanopartícula con la posición más cercana del electrón a ella. Este momento angular tiene una magnitud que aumenta conforme el radio de la nanopartícula crece y que disminuye conforme aumentan la rapidez del electrón y la distancia de su trayectoria a la nanopartícula (parámetro de impacto). En particular, los valores calculados de la transferencia de momento angular tienen un orden de magnitud que va de $10^{-4}\hbar$, para nanopartículas de aluminio, oro y bismuto de 1 nm de radio, hasta $10^{-1}\hbar$ para nanopartículas de aluminio de 50 nm. Además, en todos los casos estudiados, dadas las mismas condiciones para la transferencia de momento angular, su magnitud es mayor para las nanopartículas de oro y menor para las de aluminio, quedando el bismuto en medio.

Los campos electromagnéticos totales (los producidos por el electrón y los esparcidos por la nanopartícula) contribuyen a la transferencia de momento angular. En todos los casos estudiados, la contribución del campo eléctrico domina a la del campo magnético, aunque son comparables para velocidades altas del electrón (mayores al 90 % de la velocidad de la luz). Conforme la trayectoria del electrón se aleja de la nanopartícula (es decir, conforme aumenta el parámetro de impacto), la contribución del campo magnético disminuye. En el límite en que el parámetro de impacto es mucho mayor que el radio (límite de partícula pequeña), la transferencia de momento angular tiene únicamente contribución eléctrica.

Se establece un criterio de validez (para las nanopartículas de 1 nm de radio de los materiales estudiados) para el cálculo de la transferencia de momento angular utilizando el límite de partícula pequeña. Específicamente, se encuentra que este límite es válido siempre y cuando el parámetro de impacto sea mayor o igual que el cuádruple del radio de las nanopartículas y que la velocidad de los electrones supere el 40 % de la velocidad de la luz. Utilizando este límite, se encuentra que la interacción entre una nanopartícula y un electrón del haz de un TEM ocurre principalmente en la escala de attosegundos.

La transferencia de momento angular, en el límite de partícula pequeña, depende directamente de los mecanismos de extinción de la nanopartícula. En particular, es posible factorizar la densidad espectral de transferencia de momento angular como el producto de dos funciones: la sección transversal de extinción (que solamente contiene información de la nanopartícula) y una función que sólo contiene información sobre el electrón.

Los resultados obtenidos en este trabajo aportan al entendimiento de las características rotacionales de la interacción entre haces de electrones y nanopartículas, contribuyendo al desarrollo de la física subyacente a las tecnologías de pinzas electrónicas.

Abstract

The manipulation of objects at the micro and nanoscale is important today due to its potential technological applications. In particular, significant efforts have been made in the development of non-destructive techniques for trapping, moving, and assembling micro and nanostructures. For this purpose, the use of microscopes to study micro- and nano-objects has become relevant.

Currently, one of the most widely used microscopes to study nanostructures is the transmission electron microscope (TEM). Interestingly, the electron beams used for imaging in TEM studies have been found to have the potential to become effective tools for manipulating nanostructures. Since the year 2004, the movements that TEM electron beams induce in nanoparticles have been investigated. The electron beam has been observed to exert forces and torques on nanoparticles. The foregoing was used to successfully control the movement of nanoparticles employing electron beams. This technique is known as electron tweezers, in analogy to optical tweezers.

To fully exploit the potential of electron tweezers, it is necessary to understand the physical principles of the interaction between nanoparticles and TEM electron beams. This has motivated the development of theoretical investigations on the dynamics of nanoparticles due to electron beams. Interestingly, most of the theoretical work on electron tweezers has focused on the study of the force and linear momentum that the electron beam transfers to the nanoparticles. The study of the torque and the angular momentum transfer is still pending.

With the advent of electron vortices technologies (electron beams with a well-defined orbital angular momentum), the study of the angular dynamics that electron beams cause in nanoparticles has become imperative. Therefore, advances in electron tweezers and electronic vortices require a detailed study of the rotational characteristics in the interaction between electron beams and nanoparticles.

In this work, a theoretical study of the angular momentum that a TEM electron beam without vorticity transfers to a nanoparticle is presented. Starting from a classical electrodynamic model, expressions are obtained for the angular momentum transfer from a fast TEM electron to a spherical nanoparticle with a homogeneous and isotropic electromagnetic response. In particular, the case of aluminum, gold, and bismuth nanoparticles of different sizes is studied, covering the nanoscale.

A numerical methodology that allows studying the transfer of angular momentum to nanoparticles of any size is developed. In particular, it is possible to study the case of nanoparticles with a radius of up to 50 nm with a Drude-type response, as is the case of the aluminum considered in this work. However, the study of materials with more realistic electromagnetic responses, such as the considered gold and bismuth, exceeds the available computational capabilities. Therefore, in this work results are presented for aluminum (Drude) nanoparticles of 1 nm, 5 nm, 10 nm, 20 nm, and 50 nm in radius, while for gold and bismuth nanoparticles there are results only for 1 nm, 5 nm, and 10 nm (for 10 nm the only results are at the small particle limit).

It is found that the transferred angular momentum is always in the direction perpendicular both to the trajectory of the electron and to the line that joins the center of the nanoparticle with the nearest position of the electron to it. This angular momentum has a magnitude that increases as the radius of the nanoparticle increases, and that decreases as the speed of the electron and the distance of its path to the nanoparticle (impact parameter) increase. In particular, the calculated values of the angular momentum transfer have an order of magnitude ranging from $10^{-4}\hbar$, for aluminum, gold, and bismuth nanoparticles of radius 1 nm, up to $10^{-1}\hbar$ for 50 nm aluminum nanoparticles. Furthermore, in all the cases studied, given the same conditions for the angular momentum transfer, its magnitude is higher for gold nanoparticles and lower for aluminum ones, with bismuth in the middle.

The total electromagnetic fields (those produced by the electron and those scattered by the nanoparticle) contribute to the angular momentum transfer. In all the cases studied, the contribution of the electric field dominates that of the magnetic field, although they become comparable for high electron speeds (greater than 90 % of the speed of light). As the path of the electron moves away from the nanoparticle (that is, as the impact parameter increases), the contribution of the magnetic field decreases. At the limit where the impact parameter is much larger than the radius (small particle limit), the angular momentum transfer has only an electrical contribution.

A validity criterion is established (for nanoparticles of the studied materials with 1 nm radius) for the calculation of the angular momentum transfer using the small particle limit. Specifically, this limit is found to be valid as long as the impact parameter is greater than or equal to four times the radius of the nanoparticles and the speed of the electrons exceeds 40 % of the speed of light. Using this limit, it is found that the interaction between a nanoparticle and an electron in a TEM beam occurs mainly on the attosecond scale.

The transfer of angular momentum, at the small particle limit, depends directly on the extinction mechanisms of the nanoparticle. In particular, it is possible to factor the spectral density of angular momentum transfer as the product of two functions: the extinction cross section (which only contains information about the nanoparticle) and a function that only contains information about the electron.

The results obtained in this work contribute to the understanding of the rotational characteristics of the interaction between electron beams and nanoparticles, serving to the development of the underlying physics of electronic tweezers technologies.

Introducción

La capacidad para manipular objetos de dimensiones menores a la longitud de onda de la luz es un área de investigación activa que tiene como objetivo controlar y diseñar micro y nanoestructuras [1–4]. Debido a su relevancia tecnológica, desde el siglo pasado se han investigado técnicas no destructivas para atrapar, mover y ensamblar con precisión micro y nanoobjetos [3, 5, 6]. En particular, una técnica que ha resultado muy útil para esta finalidad son las pinzas ópticas [3–7], en las cuales se utilizan las fuerzas electromagnéticas producidas por láseres enfocados para atrapar y mover objetos micrométricos e incluso nanopartículas plasmónicas [3–9].

Las pinzas ópticas han permitido, entre otras cosas, atrapar micro y nanoojetos, fijando su posición, para ser estudiados con técnicas de microscopía [5]. En particular, dada la versatilidad y la capacidad de los microscopios electrónicos de transmisión (TEMs por sus siglas en inglés) [6, 10–14], Javier García de Abajo publicó en el año 2004 el artículo “Momentum transfer to small particles by passing electron beams” [15], el cual trata sobre la viabilidad de estudiar con un TEM nanopartículas (NPs) atrapadas con una pinza óptica. Específicamente, García de Abajo estudió teóricamente las fuerzas y torcas que un haz de electrones típico del TEM podría ejercer sobre una NP atrapada, así como la transferencia de momento lineal y angular del haz a la NP. Algo interesante que se reporta en ese trabajo es que el haz del TEM ejerce una fuerza sobre la NP, que puede ser atractiva (hacia el haz) o repulsiva, y que dicha fuerza tiene una magnitud comparable a la de las pinzas ópticas. En ese mismo año se reportaron las primeras observaciones experimentales de movimiento en NPs inducido por haces de TEM [6, 16–18]. Desde entonces, se ha investigado la posibilidad de utilizar los haces de TEM para la manipulación de nanopartículas, técnica conocida actualmente como pinzas electrónicas en analogía con las pinzas ópticas [6, 19]. Al momento en que se escribe este trabajo, se han publicado más de una decena de estudios experimentales sobre pinzas electrónicas [6, 16–28]. En estos trabajos, además de la atracción y repulsión de NPs respecto al haz de electrones, se han reportado rotaciones de las NPs debido al momento angular que les transfiere el haz [6, 19, 21, 23].

Comprender los principios físicos de la interacción entre las NPs y los haces de electrones de TEM es fundamental para el avance de las pinzas electrónicas. Lo anterior ha motivado la investigación teórica sobre la dinámica de NPs en su interacción con haces de electrones de TEM [10, 15, 19, 25, 29–36]. En particular, ha resultado de especial interés estudiar la interacción de NPs con el haz de TEM en el modo de barrido (STEM por Scanning TEM) debido a la alta resolución espacial (< 0.1 nm) y espectral (hasta

10 meV) que se puede alcanzar [11, 12].

El STEM forma sus imágenes enfocando el haz de electrones y barriendo con él las muestras sobre un plano, utilizando los electrones espardidos por ellas [19]. Por ejemplo, en la Fig. 1.1, reproducida de [19], se muestran dos NPs de oro (en amarillo): una grande, a la izquierda de la imagen, y una pequeña, dentro del cuadrilátero blanco de la derecha. La NP de oro pequeña está siendo escaneada por el haz de un STEM, el cual barre la región plana delimitada por las líneas blancas. El haz de electrones del STEM permanece durante un 20 % del tiempo de barrido al principio de cada una de las líneas sobre las que éste se efectúa, produciendo una corriente neta de electrones que viajan fuera de la NP, ilustrada en la Fig. 1.1 como una región sombreada en azul, de manera que, aunque el haz barre toda la muestra que se observa con el STEM, hay un *parámetro de impacto efectivo* respecto a la superficie de la NP (ver Fig. 1.1).

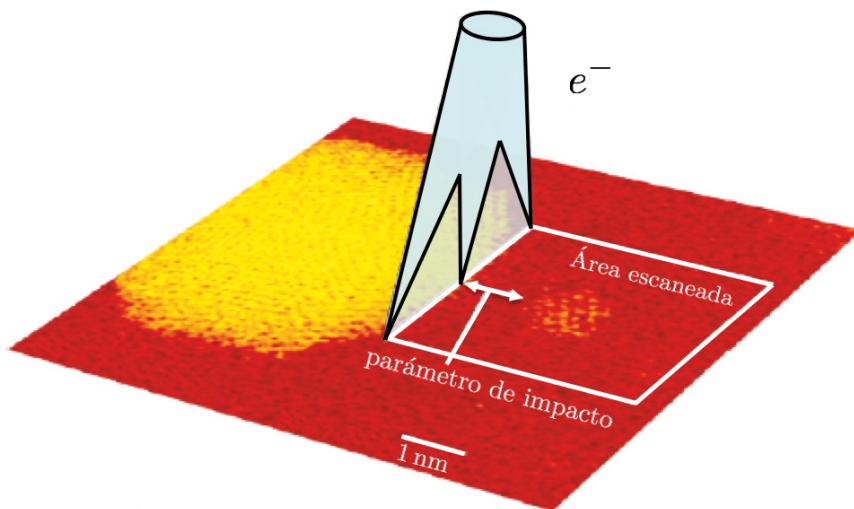


Figura 1.1: Esquema del haz de electrones de un microscopio electrónico de transmisión, en modo de barrido (STEM), interactuando con dos nanopartículas de oro, reproducida de la Ref. [19].

En la Fig. 1.2 se muestran algunos de los resultados reportados en la Ref. [19]. La Fig. 1.2 muestra seis imágenes de STEM, a distintos tiempos, de una NP de oro de 1.5 nm en presencia de otra de 5 nm. En todas las imágenes de la Fig. 1.2, el haz de referencia (que define el parámetro de impacto efectivo) se encuentra a la izquierda de la NP (por ejemplo, en las imágenes inferiores el haz se encuentra en la región marcada con doble línea punteada). Las tres imágenes superiores de la Fig. 1.2, tomadas con un parámetro de impacto efectivo de 4.5 nm, muestran una interacción atractiva entre el haz y la NP, pues se observa que la NP se acerca al borde izquierdo de las imágenes, lo cual se puede apreciar utilizando la línea punteada blanca auxiliar entre las NPs. Por el contrario, en las imágenes inferiores de la Fig. 1.2, cuyo haz de referencia tiene un parámetro de impacto de 1 nm, se observa que la NP se aleja del haz indicando una interacción repulsiva.

Otra característica interesante que puede apreciarse en las imágenes anteriores es el giro de las nanopartículas inducido por el haz de electrones a las NPs. Por ejemplo, utilizando las líneas guía que se han trazado en las facetas de la NP más grande de la Fig. 1.2 y que forman un polígono, puede apreciarse que, en las tres imágenes superiores, dicha NP gira en un sentido horario mientras que en las inferiores, al cambiar el parámetro de impacto, el giro es en sentido contrario.

La mayoría de los trabajos teóricos sobre pinzas electrónicas se han centrado en el estudio de las

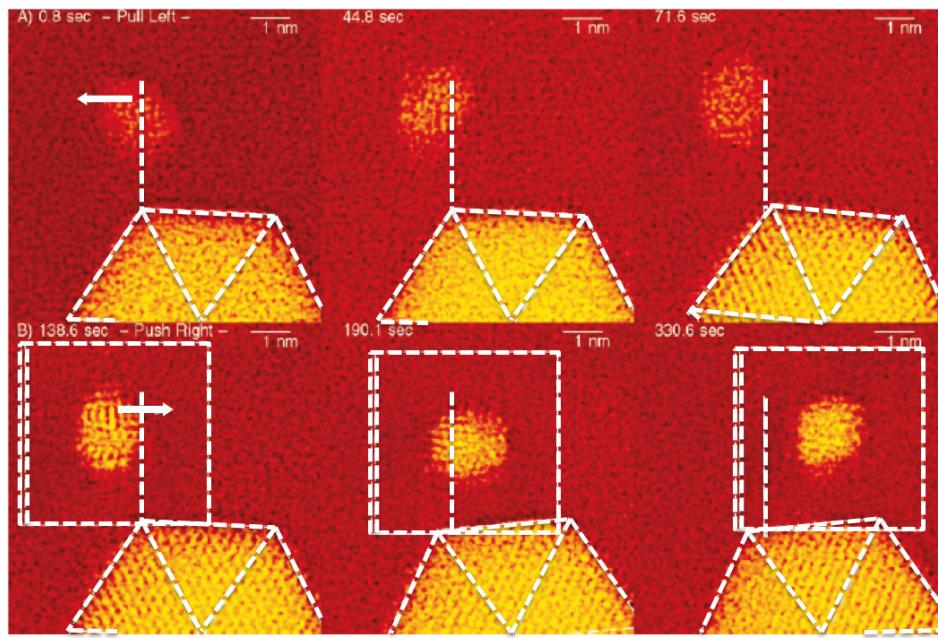


Figura 1.2: Resultados reproducidos de la Ref. [19] de la transferencia de momento lineal y angular del haz de electrones de un STEM a nanopartículas de oro sobre un sustrato de carbono amorfó.

fuerzas y la transferencia de momento lineal, quedando pendiente la dinámica angular. Sin embargo, un estudio detallado de la dinámica angular que experimentan las NPs en su interacción con el haz de STEM es fundamental para el desarrollo de las pinzas electrónicas. Más aún, con el desarrollo de haces de electrones con un momento angular orbital bien definido respecto a su eje de propagación (vórtices electrónicos) [37], los cuales han permitido estudiar la respuesta magnética local de nanoestructuras [38], se ha vuelto importante estudiar las características angulares de la interacción entre NPs y haces de electrones.

En este trabajo se presenta un estudio teórico de la dinámica angular de una NP debida a su interacción con un haz de electrones de STEM. Específicamente, se estudia la transferencia de momento angular (TMA) del haz a la NP utilizando un enfoque de electrodinámica clásica.

En el Capítulo 2 se desarrolla la teoría electrodinámica general de la TMA a NPs esféricas, incluyendo una discusión sobre los campos electromagnéticos involucrados en la interacción. En el Capítulo 3 se estudia el límite cuasiestático de la TMA a NPs pequeñas, incluyendo expresiones para el estudio de la dinámica temporal de las NPs debida al haz de electrones. En el Capítulo 4 se presentan y discuten resultados de la TMA a NPs plasmónicas de aluminio, oro y bismuto de distintos tamaños, cubriendo la escala nanométrica. Finalmente, el trabajo concluye enlistando los resultados obtenidos más importantes y discutiendo el panorama futuro de este tema en la sección Conclusiones y perspectivas.

Como complemento, se incluye al final de esta tesis la Lista de publicaciones arbitradas que el autor realizó durante su doctorado.

Capítulo 2

Teoría y métodos

Una de las principales motivaciones para la realización de este trabajo es la interacción entre nanopartículas (NPs) y los haces de electrones utilizados para estudiarlas en los microscopios electrónicos de transmisión (TEMs) en modo de barrido (STEM). Actualmente, los haces de electrones del STEM alcanzan enfoques de hasta centésimas de nanómetro, utilizando voltajes de aceleración de hasta 400 kV, con una corriente eléctrica del orden de pA [10–12]. Esta corriente eléctrica consiste, de manera efectiva, en un tren de electrones con velocidades relativistas¹, cada uno de los cuales se emite aproximadamente cada 10^{-8} s. Considerando que la vida media de las excitaciones electrónicas en nanopartículas es típicamente del orden de 10^{-14} s [41, 42], en un STEM las NPs interactúan con el haz de electrones, prácticamente, un electrón a la vez.

Las excitaciones electrónicas en medios materiales habitualmente tienen energías que van de unos cuantos eV hasta decenas de eV [43, 44], las cuales suelen ser menores a las energías típicas de los haces electrónicos de STEM [10]. Más aún, los haces de electrones en estudios de STEM permanecen prácticamente rectos, con una deflexión despreciable (del orden de miliradianes [13, 45, 46]) siempre y cuando no incidan directamente sobre las muestras de estudio. En consecuencia, para muchos estudios, y en particular para este trabajo, es suficiente estudiar la interacción entre una nanopartícula y un sólo electrón que viaja en línea recta con una velocidad relativista constante [10, 15, 19, 25, 29–36, 47].

Considerando las dimensiones de las NPs² y las velocidades de los electrones en el haz de un STEM, podría esperarse que los efectos cuánticos sean importantes en su interacción. Sin embargo, se ha encontrado que una descripción cuántica, tanto del electrón como de la NP, es innecesaria para estudiar la espectroscopía por pérdida de energía de electrones y la catodoluminiscencia, siempre y cuando se considere un sólo electrón, viajando en línea recta, interactuando con la NP [13]. Es decir, un modelo clásico de la interacción entre el electrón y la NP es suficiente para reproducir las transferencias de energía entre ellos. Lo anterior ha motivado el estudio de la transferencia de momento lineal y angular del electrón a la

¹La fórmula relativista de la energía cinética T de una partícula puntual que se mueve con una rapidez v está dada por [39]

$$T = (\gamma - 1) mc^2,$$

en donde c es la rapidez de la luz, m es la masa en reposo de la partícula y $\gamma = [1 - (v/c)^2]^{-1/2}$ es el factor de Lorentz. Un electrón con una energía cinética de 400 keV tiene aproximadamente una rapidez de $0.827c$, ya que, de acuerdo a [40], la masa en reposo del electrón es $m_e = 0.51099895000(15) \text{ MeV}/c^2$. Para 3 keV la rapidez equivalente es $0.1c$.

²Se considera como escala nanométrica a distancias entre 1 y 100 nm [48].

NP utilizando modelos clásicos [10, 15, 19, 25, 29–36, 47].

Ahora bien, cuando el electrón pasa muy cerca de la NP, los efectos cuánticos deben considerarse, principalmente, debido a su fuerte correlación con los electrones de la NP. Por lo anterior, es importante determinar la separación mínima que debe existir entre el electrón y la NP para que una descripción clásica de la interacción pueda ser válida.

En general, resulta suficiente modelar a un electrón como una partícula puntual eléctricamente cargada [49]. De hecho, aunque el electrón podría tener un tamaño finito debido a fluctuaciones del vacío, es decir, no ser una partícula puntual, su extensión espacial se estima del orden de su longitud de onda de Compton [50], dada por $\lambda_C = 2.426 \times 10^{-3}$ nm [51]. Más aún, un electrón de STEM (que viaja con velocidad relativista) tiene una longitud de onda de De Broglie λ_B del orden de 10^{-2} nm [10]. Entonces, en este trabajo se consideran distancias entre la NP y el electrón en el orden de nanómetros, siempre mayores que λ_C y λ_B . Por lo tanto, de aquí en adelante se considera al electrón como una partícula puntual clásica cargada eléctricamente.

En este capítulo se presenta un modelo electrodinámico clásico para la transferencia de momento angular (TMA) de un electrón rápido a una nanopartícula, partiendo de la conservación del momento angular en electrodinámica. Se considera que la respuesta electromagnética de la NP está dada por su función dieléctrica y se estudia con detalle el caso de NPs esféricas.

Por cuestiones numéricas, es conveniente abordar este problema utilizando *unidades atómicas gaussianas*, las cuales son prácticamente unidades cgs en las que la masa del electrón m_e , su carga q_e y la constante reducida de Planck \hbar se igualan a 1, sin dimensiones: $q_e = m_e = \hbar = 1$ [52]. Por lo tanto, a menos que se indique lo contrario, en este trabajo utilizaremos unidades atómicas gaussianas para los desarrollos teóricos. Sin embargo, en la presentación de resultados se utilizarán unidades SI con la excepción de la energía, para la cual se utilizará el eV como es costumbre en la comunidad de microscopía electrónica [10]. Los resultados de la TMA se presentarán en múltiplos de \hbar .

2.1. Conservación del momento angular en electrodinámica

Para obtener la ecuación de conservación del momento angular en electrodinámica, es conveniente partir de la ecuación de conservación del momento lineal [53], dada por

$$\frac{\partial}{\partial t} (\vec{p}^{\text{mec}} + \vec{p}^{\text{em}}) = \nabla \cdot \vec{T}, \quad (2.1)$$

en donde \vec{p}^{mec} es la densidad de momento lineal mecánico, \vec{p}^{em} es la densidad de momento lineal electromagnético y \vec{T} es el tensor de esfuerzos de Maxwell. Explícitamente,

$$\vec{p}^{\text{em}} = \frac{\vec{E} \times \vec{B}}{4\pi c}, \quad (2.2)$$

$$T_{ij} = \frac{1}{4\pi} \left[E_i E_j + B_i B_j - \frac{\delta_{ij}}{2} (E^2 + B^2) \right], \quad (2.3)$$

en donde T_{ij} es la entrada ij de \vec{T} , c es la rapidez de la luz, $\vec{E} = \vec{E}(\vec{r}, t)$ y $\vec{B} = \vec{B}(\vec{r}, t)$ son los campos eléctrico y magnético, respectivamente, en función tanto de la posición \vec{r} como del tiempo t , $E^2 = \vec{E} \cdot \vec{E}$,

$B^2 = \vec{\mathbf{B}} \cdot \vec{\mathbf{B}}$ y δ_{ij} es la delta de Kronecker.

Partiendo de la Ec. (2.1), la conservación del momento angular en electrodinámica está dada por [53]

$$\frac{\partial}{\partial t} (\vec{\ell}^{\text{mec}} + \vec{\ell}^{\text{em}}) = \vec{\mathbf{r}} \times \nabla \cdot \vec{\mathbf{T}}, \quad (2.4)$$

en donde $\vec{\ell}^{\text{mec}} = \vec{\mathbf{r}} \times \vec{\mathbf{p}}^{\text{mec}}$ y $\vec{\ell}^{\text{em}} = \vec{\mathbf{r}} \times \vec{\mathbf{p}}^{\text{em}}$ son las densidades volumétricas de momento angular mecánico y electromagnético, respectivamente.

Utilizando la notación de índices y la convención de suma de Einstein [54], la Ec. (2.4) puede expresarse como [53]

$$\epsilon_{kli} r_l \frac{\partial}{\partial r_j} T_{ij} = \frac{\partial}{\partial t} (\ell_k^{\text{mec}} + \ell_k^{\text{em}}), \quad (2.5)$$

en donde ϵ_{kli} es el símbolo totalmente antisimétrico de Levi-Civita [54].

El tensor de esfuerzos de Maxwell es simétrico ($T_{ij} = T_{ji}$) [53], por lo que se cumple la siguiente identidad:

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial r_j} \epsilon_{kli} r_l T_{ij} &= \epsilon_{kli} \delta_{lj} T_{ij} + \epsilon_{kli} r_l \frac{\partial}{\partial r_j} T_{ij} \\ &= \epsilon_{kji} T_{ij} + \epsilon_{kli} r_l \frac{\partial}{\partial r_j} T_{ij} \\ &= \epsilon_{kli} r_l \frac{\partial}{\partial r_j} T_{ij}. \end{aligned} \quad (2.6)$$

De este modo, sustituyendo la Ec. (2.6) en la Ec. (2.5) se obtiene que

$$\frac{\partial}{\partial r_j} M_{kj} = \frac{\partial}{\partial t} (\ell_k^{\text{mec}} + \ell_k^{\text{em}}), \quad (2.7)$$

en donde

$$M_{kj} = \epsilon_{kli} r_l T_{ij}. \quad (2.8)$$

La Ec. (2.7) es la forma local de la conservación del momento angular. Integrando la Ec. (2.7) en el volumen interior V de alguna superficie diferenciable S , estática y cerrada, y utilizando el teorema de la divergencia, se encuentra que la forma global de la conservación del momento angular es [53]:

Conservación del momento angular en electrodinámica

$$\oint_S \vec{\mathbf{M}} \cdot d\vec{\mathbf{a}} = \frac{d}{dt} (\vec{\mathbf{L}}^{\text{mec}} + \vec{\mathbf{L}}^{\text{em}}) \quad (2.9)$$

en donde

$$\vec{\mathbf{L}}^{\text{mec}} = \int_V \vec{\ell}^{\text{mec}} dV \quad (2.10)$$

y

$$\vec{\mathbf{L}}^{\text{em}} = \int_V \vec{\ell}^{\text{em}} dV. \quad (2.11)$$

2.2. Transferencia de momento angular de un electrón rápido a una nanopartícula esférica

Una vez formulada la expresión general de la conservación de momento angular, es posible estudiar el momento angular que el haz de electrones de un STEM transfiere a una nanopartícula (NP). Como se ha discutido antes, es suficiente estudiar la interacción de la nanopartícula con un sólo electrón del haz. En esta sección se desarrolla la teoría para la transferencia de momento angular (TMA) de un electrón rápido a una nanopartícula con forma esférica.

La situación física consiste en un electrón, con carga q_e , que viaja con una velocidad constante, de magnitud v y dirección $\hat{\mathbf{e}}_z$, en una trayectoria recta que cruza el eje x a una distancia b (parámetro de impacto) del centro de una NP esférica, de radio a , centrada en el origen de coordenadas, como se ilustra en la Fig. 2.1. El tiempo se mide de tal forma que $t = 0$ corresponde al instante en que el electrón se encuentra más cerca de la NP, en la posición $(b, 0, 0)$ de la Fig. 2.1, y se asume que el electrón viaja de $t = -\infty$ a $t = \infty$.

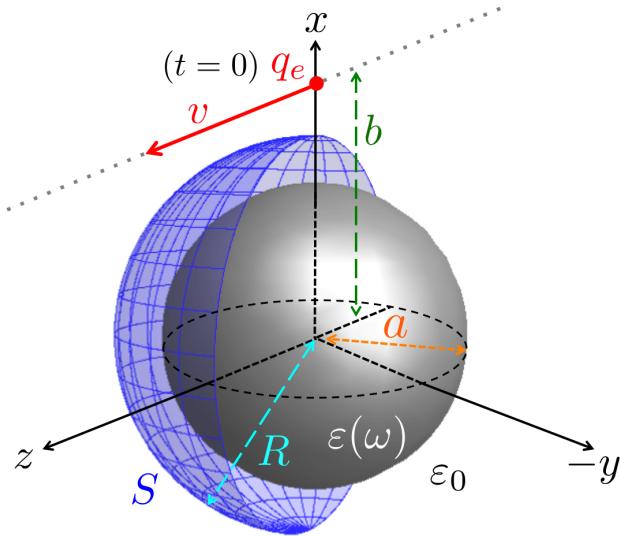


Figura 2.1: Un electrón, con carga q_e , viaja con velocidad constante, de magnitud v y dirección $\hat{\mathbf{e}}_z$, a una distancia b del centro de una nanopartícula esférica, de radio a , embebida en vacío. La respuesta electromagnética de la nanopartícula está dada por una función dieléctrica $\varepsilon(\omega)$. El tiempo $t = 0$ corresponde al instante en que el electrón está en el punto $(b, 0, 0)$. Se muestra un hemisferio de la esfera de integración S , de radio $a < R < b$, utilizada para la aplicación de la Ec. (2.9).

También se asume que la nanopartícula, suspendida en vacío, es eléctricamente neutra, no magnética y posee una respuesta electromagnética homogénea e isótropa, es decir, una función dieléctrica compleja $\varepsilon(\omega)$ escalar que sólo depende de la frecuencia ω . Considerando el centro de la nanopartícula como punto de referencia, el momento angular total que el electrón transfiere a la NP se obtiene integrando la Ec. (2.9) en todo el tiempo de vuelo del electrón:

$$\int_{-\infty}^{\infty} \oint_S \vec{M} \cdot d\vec{a} dt = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d}{dt} (\vec{L}^{\text{mec}} + \vec{L}^{\text{em}}) dt \\ = [\vec{L}^{\text{mec}}(t = \infty) - \vec{L}^{\text{mec}}(t = -\infty)] + [\vec{L}^{\text{em}}(t = \infty) - \vec{L}^{\text{em}}(t = -\infty)]. \quad (2.12)$$

Considerando como superficie de integración S una esfera concéntrica exterior a la NP, de radio R ($a <$

$R < b$), como se ilustra en la Fig. 2.1, se encuentra, a partir de la Ec. (2.2), que

$$\vec{\mathbf{L}}^{\text{em}}(t = \pm\infty) = \frac{1}{4\pi c} \int_V \vec{\mathbf{r}} \times [\vec{\mathbf{E}}(t = \pm\infty) \times \vec{\mathbf{B}}(t = \pm\infty)] dV, \quad (2.13)$$

en donde V es el interior de S . Los campos electromagnéticos (EMs) presentes en la Ec. (2.13) son los campos totales. En este problema hay dos campos EMs: los campos EMs producidos por el electrón, denominados *externos* en este trabajo, y los campos EMs *esparcidos* por la NP (debidos a los campos externos).

En $t = -\infty$, cuando el electrón se encuentra infinitamente lejos de la NP, los campos EMs externos son cero en la NP, de modo que no hay campos EMs esparcidos en $t = -\infty$. Por lo tanto, de la Ec. (2.13) se sigue que $\vec{\mathbf{L}}^{\text{em}}(t = -\infty) = \vec{0}$.

En $t = \infty$, el electrón está nuevamente infinitamente lejos de la NP, de manera que los campos EMs externos en la NP son otra vez cero. Sin embargo, durante su trayecto, el electrón induce densidades de carga y corriente en la NP, produciendo los campos EMs esparcidos. Debido a los efectos disipativos en la NP, representados por la parte imaginaria de la función dieléctrica, todas las densidades de carga y de corriente inducidas desaparecen en $t = \infty$. De este modo, los campos EMs esparcidos en V son cero en $t = \infty$ y, en consecuencia, $\vec{\mathbf{L}}^{\text{em}}(t = \infty) = \vec{0}$. Por lo tanto, la Ec. (2.12) se simplifica:

$$\Delta \vec{\mathbf{L}}^{\text{mec}} = \int_{-\infty}^{\infty} \oint_S \vec{\mathbf{M}} \cdot d\vec{\mathbf{a}} dt, \quad (2.14)$$

donde

$$\Delta \vec{\mathbf{L}}^{\text{mec}} = \vec{\mathbf{L}}^{\text{mec}}(t = \infty) - \vec{\mathbf{L}}^{\text{mec}}(t = -\infty). \quad (2.15)$$

Sustituyendo la Ec. (2.8) en la Ec. (2.14) y cambiando el orden de integración

$$\Delta \vec{\mathbf{L}}^{\text{mec}} = \int_{-\infty}^{\infty} \left[\oint_S M_{kj} da_j \right] dt = \oint_S \left[\int_{-\infty}^{\infty} M_{kj} dt \right] da_j = \oint_S \epsilon_{kli} r_l \left[\int_{-\infty}^{\infty} T_{ij} dt \right] da_j, \quad (2.16)$$

por lo que, utilizando la Ec.(2.3), se obtiene que

$$\Delta \vec{\mathbf{L}}^{\text{mec}} = \oint_S \frac{\epsilon_{kli} r_l}{4\pi} \left\{ \int_{-\infty}^{\infty} \left[E_i E_j + B_i B_j - \frac{\delta_{ij}}{2} (E_\alpha E_\alpha + B_\alpha B_\alpha) \right] dt \right\} da_j, \quad (2.17)$$

en donde se ha reescrito E^2 como $E_\alpha E_\alpha$ y B^2 como $B_\alpha B_\alpha$ utilizando la convención de suma de Einstein.

Para continuar, es conveniente representar por $A_j(\vec{\mathbf{r}}, t)$ a cualquiera de las componentes de los campos electromagnéticos y considerar la transformada de Fourier $\tilde{A}_j(\vec{\mathbf{r}}, \omega)$ de $A_j(\vec{\mathbf{r}}, t)$ de modo que

$$\tilde{A}_j(\vec{\mathbf{r}}, \omega) = \int_{-\infty}^{\infty} A_j(\vec{\mathbf{r}}, t) e^{i\omega t} dt \quad \text{y} \quad A_j(\vec{\mathbf{r}}, t) = \int_{-\infty}^{\infty} \tilde{A}_j(\vec{\mathbf{r}}, \omega) e^{-i\omega t} \frac{d\omega}{2\pi}. \quad (2.18)$$

Como los campos EMs en el tiempo son funciones reales, se cumple que

$$\tilde{A}_i^*(\vec{\mathbf{r}}, \omega) = \tilde{A}_i(\vec{\mathbf{r}}, -\omega), \quad (2.19)$$

donde * denota complejo conjugado, de manera que, al escribir los campos electromagnéticos de la Ec. (2.17) en términos de sus transformadas de Fourier y simplificando la notación mediante $\tilde{A}_i(\vec{\mathbf{r}}; \omega) = \tilde{A}_i(\omega)$,

se obtiene

$$\begin{aligned}
\Delta \vec{\mathbf{L}}^{\text{mec}} &= \oint_S \frac{\epsilon_{kli} r_l}{4\pi} \left(\frac{1}{2\pi} \right) \left(\int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \left\{ \tilde{E}_i(\omega) \tilde{E}_j(\omega') + \tilde{B}_i(\omega) \tilde{B}_j(\omega') - \frac{\delta_{ij}}{2} \left[\tilde{E}_{\alpha}(\omega) \tilde{E}_{\alpha}(\omega') + \right. \right. \right. \\
&\quad \left. \left. \left. \tilde{B}_{\alpha}(\omega) \tilde{B}_{\alpha}(\omega') \right] \right\} d\omega d\omega' \right) \left(\frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} e^{-i(\omega+\omega')t} dt \right) da_j \\
&= \oint_S \frac{\epsilon_{kli} r_l}{4\pi} \left(\frac{1}{2\pi} \right) \left(\int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \left\{ \tilde{E}_i(\omega) \tilde{E}_j(\omega') + \tilde{B}_i(\omega) \tilde{B}_j(\omega') - \frac{\delta_{ij}}{2} \left[\tilde{E}_{\alpha}(\omega) \tilde{E}_{\alpha}(\omega') + \right. \right. \right. \\
&\quad \left. \left. \left. \tilde{B}_{\alpha}(\omega) \tilde{B}_{\alpha}(\omega') \right] \right\} d\omega d\omega' \right) \delta(\omega + \omega') da_j \\
&= \oint_S \frac{\epsilon_{kli} r_l}{8\pi^2} \int_{-\infty}^{\infty} \left\{ \tilde{E}_i(\omega) \tilde{E}_j^*(\omega) + \tilde{B}_i(\omega) \tilde{B}_j^*(\omega) - \frac{\delta_{ij}}{2} \left[\tilde{E}_{\alpha}(\omega) \tilde{E}_{\alpha}^*(\omega) + \right. \right. \\
&\quad \left. \left. \tilde{B}_{\alpha}(\omega) \tilde{B}_{\alpha}^*(\omega) \right] \right\} d\omega da_j, \tag{2.20}
\end{aligned}$$

en donde $\delta(x)$ es la función delta de Dirac. Considerando la integral

$$\begin{aligned}
\mathcal{I}_{ij} &= \int_{-\infty}^{\infty} \left\{ \tilde{A}_i(\omega) \tilde{A}_j^*(\omega) - \frac{1}{2} \delta_{ij} \tilde{A}_{\alpha}(\omega) \tilde{A}_{\alpha}^*(\omega) \right\} d\omega \\
&= \int_{-\infty}^0 \left\{ \tilde{A}_i(\omega) \tilde{A}_j^*(\omega) - \frac{1}{2} \delta_{ij} \tilde{A}_{\alpha}(\omega) \tilde{A}_{\alpha}^*(\omega) \right\} d\omega + \int_0^{\infty} \left\{ \tilde{A}_i(\omega) \tilde{A}_j^*(\omega) - \frac{1}{2} \delta_{ij} \tilde{A}_{\alpha}(\omega) \tilde{A}_{\alpha}^*(\omega) \right\} d\omega \tag{2.21}
\end{aligned}$$

y haciendo el cambio $\omega \mapsto -\omega$ en la integral en $(-\infty, 0)$ se obtiene

$$\mathcal{I}_{ij} = \int_0^{\infty} \left\{ \tilde{A}_i(-\omega) \tilde{A}_j^*(-\omega) - \frac{1}{2} \delta_{ij} \tilde{A}_{\alpha}(-\omega) \tilde{A}_{\alpha}^*(-\omega) \right\} d\omega + \int_0^{\infty} \left\{ \tilde{A}_i(\omega) \tilde{A}_j^*(\omega) - \frac{1}{2} \delta_{ij} \tilde{A}_{\alpha}(\omega) \tilde{A}_{\alpha}^*(\omega) \right\} d\omega. \tag{2.22}$$

Utilizando el carácter real de los campos electromagnéticos en el tiempo, Ec. (2.19), y simplificando aún más la notación al hacer $\tilde{A}_i(\omega) = \tilde{A}_i$, la Ec. (2.22) se puede reescribir como

$$\begin{aligned}
\mathcal{I}_{ij} &= \int_0^{\infty} \left\{ \tilde{A}_i^*(\omega) \tilde{A}_j(\omega) - \frac{1}{2} \delta_{ij} \tilde{A}_{\alpha}(\omega) \tilde{A}_{\alpha}^*(\omega) \right\} d\omega + \int_0^{\infty} \left\{ \tilde{A}_i(\omega) \tilde{A}_j^*(\omega) - \frac{1}{2} \delta_{ij} \tilde{A}_{\alpha}(\omega) \tilde{A}_{\alpha}^*(\omega) \right\} d\omega \\
&= \int_0^{\infty} \left\{ [\tilde{A}_i^* \tilde{A}_j + \tilde{A}_i \tilde{A}_j^*] - \delta_{ij} \tilde{A}_{\alpha} \tilde{A}_{\alpha}^* \right\} d\omega \\
&= 2 \left\{ \int_0^{\infty} \operatorname{Re} \left[\tilde{A}_i \tilde{A}_j^* - \frac{1}{2} \delta_{ij} \tilde{A}_{\alpha} \tilde{A}_{\alpha}^* \right] d\omega \right\}, \tag{2.23}
\end{aligned}$$

en donde $\operatorname{Re}[z]$ denota la parte real de z . Por lo tanto, la Ec. (2.20) se puede reescribir mediante la Ec. (2.23) como

$$\begin{aligned}
\Delta \vec{\mathbf{L}}^{\text{mec}} &= \oint_S \frac{\epsilon_{kli} r_l}{4\pi^2} \int_0^{\infty} \operatorname{Re} \left[\tilde{E}_i \tilde{E}_j^* + \tilde{B}_i \tilde{B}_j^* - \frac{\delta_{ij}}{2} (\tilde{E}_{\alpha} \tilde{E}_{\alpha}^* + \tilde{B}_{\alpha} \tilde{B}_{\alpha}^*) \right] d\omega da_j \\
&= \frac{1}{4\pi^2} \int_0^{\infty} \oint_S \epsilon_{kli} r_l \operatorname{Re} \left[\tilde{E}_i \tilde{E}_j^* + \tilde{B}_i \tilde{B}_j^* - \frac{\delta_{ij}}{2} (\tilde{E}_{\alpha} \tilde{E}_{\alpha}^* + \tilde{B}_{\alpha} \tilde{B}_{\alpha}^*) \right] da_j d\omega. \tag{2.24}
\end{aligned}$$

Definiendo el tensor $\overleftrightarrow{\mathbf{D}}(\vec{\mathbf{r}}, \omega)$ como aquel con entradas

$$D_{ij} = \operatorname{Re} \left[\tilde{E}_i \tilde{E}_j^* + \tilde{B}_i \tilde{B}_j^* - \frac{\delta_{ij}}{2} (\tilde{E}_{\alpha} \tilde{E}_{\alpha}^* + \tilde{B}_{\alpha} \tilde{B}_{\alpha}^*) \right], \tag{2.25}$$

la Ec. (2.24) puede escribirse como

$$\Delta \vec{\mathbf{L}}^{\text{mec}} = \int_0^\infty \vec{\mathcal{L}}(\omega) d\omega, \quad (2.26)$$

en donde

$$\mathcal{L}_k(\omega) = \frac{1}{4\pi^2} \oint_S \epsilon_{klr} r_l D_{ij}(\vec{\mathbf{r}}, \omega) da_j \quad (2.27)$$

es la entrada k del vector $\vec{\mathcal{L}}(\omega)$ que, de acuerdo a la Ec. (2.26), representa la *densidad espectral* de la transferencia de momento angular del electrón a la NP. En particular, en las coordenadas cartesianas mostradas en la Fig. 2.1:

$$\mathcal{L}_x = \frac{1}{4\pi^2} \left[\oint_S y D_{zj} da_j - \oint_S z D_{yj} da_j \right], \quad (2.28)$$

$$\mathcal{L}_y = \frac{1}{4\pi^2} \left[\oint_S z D_{xj} da_j - \oint_S x D_{zj} da_j \right], \quad (2.29)$$

$$\mathcal{L}_z = \frac{1}{4\pi^2} \left[\oint_S x D_{yj} da_j - \oint_S y D_{xj} da_j \right]. \quad (2.30)$$

En la esfera de integración S (ver Fig. 2.1) se tiene que, si n representa a cualquiera de las coordenadas cartesianas $\{x, y, z\}$, entonces

$$D_{nj} da_j = \hat{\mathbf{e}}_n \cdot \vec{\mathbf{D}} \cdot d\vec{\mathbf{a}} = R^2 \hat{\mathbf{e}}_n \cdot \vec{\mathbf{D}} \cdot \hat{\mathbf{e}}_r \sin \theta d\theta d\varphi, \quad (2.31)$$

donde $\hat{\mathbf{e}}_d$ denota al vector unitario en la dirección d y se han utilizado las coordenadas esféricas $r = \sqrt{x^2 + y^2 + z^2}$, $\theta = \arctan(\sqrt{x^2 + y^2}/z)$ y $\varphi = \arctan(y/x)$. Por lo tanto, considerando las coordenadas esféricas del tensor $\vec{\mathbf{D}}$ en la Ec. (2.31) se obtiene que

$$D_{nj} da_j = R^2 \hat{\mathbf{e}}_n \cdot (\hat{\mathbf{e}}_r D_{rr} + \hat{\mathbf{e}}_\theta D_{\theta r} + \hat{\mathbf{e}}_\varphi D_{\varphi r}) \sin \theta d\theta d\varphi. \quad (2.32)$$

En términos de los vectores unitarios cartesianos, los vectores unitarios de las coordenadas esféricas son

$$\begin{aligned} \hat{\mathbf{e}}_r &= \sin \theta \cos \varphi \hat{\mathbf{e}}_x + \sin \theta \sin \varphi \hat{\mathbf{e}}_y + \cos \theta \hat{\mathbf{e}}_z, \\ \hat{\mathbf{e}}_\theta &= \cos \theta \cos \varphi \hat{\mathbf{e}}_x + \cos \theta \sin \varphi \hat{\mathbf{e}}_y - \sin \theta \hat{\mathbf{e}}_z, \\ \hat{\mathbf{e}}_\varphi &= -\sin \varphi \hat{\mathbf{e}}_x + \cos \varphi \hat{\mathbf{e}}_y, \end{aligned} \quad (2.33)$$

por lo tanto, de las Ecs. (2.32) y (2.33) se sigue que

$$\begin{aligned} D_{xj} da_j &= R^2 (\sin^2 \theta \cos \varphi D_{rr} + \sin \theta \cos \theta \cos \varphi D_{\theta r} - \sin \theta \sin \varphi D_{\varphi r}) d\theta d\varphi, \\ D_{yj} da_j &= R^2 (\sin^2 \theta \sin \varphi D_{rr} + \sin \theta \cos \theta \sin \varphi D_{\theta r} - \sin \theta \cos \varphi D_{\varphi r}) d\theta d\varphi, \\ D_{zj} da_j &= R^2 (\sin \theta \cos \theta D_{rr} - \sin^2 \theta D_{\theta r}) d\theta d\varphi. \end{aligned} \quad (2.34)$$

Ahora bien, los puntos sobre la esfera de integración S son de la forma

$$x = R \sin \theta \cos \varphi, \quad y = R \sin \theta \sin \varphi, \quad z = R \cos \theta, \quad (2.35)$$

de modo que, sustituyendo las Ecs. (2.34) y (2.35) en las Ecs. (2.28)-(2.30), se encuentra que

$$yD_{zj}da_j = R^3 (\sin^2 \theta \cos \theta \sin \varphi D_{rr} - \sin^3 \theta \sin \varphi D_{\theta r}) d\theta d\varphi, \quad (2.36)$$

$$zD_{yj}da_j = R^3 (\sin^2 \theta \cos \theta \sin \varphi D_{rr} + \sin \theta \cos^2 \theta \sin \varphi D_{\theta r} + \sin \theta \cos \theta \cos \varphi D_{\varphi r}) d\theta d\varphi, \quad (2.37)$$

$$zD_{xj}da_j = R^3 (\sin^2 \theta \cos \theta \cos \varphi D_{rr} + \sin \theta \cos^2 \theta \cos \varphi D_{\theta r} - \sin \theta \cos \theta \sin \varphi D_{\varphi r}) d\theta d\varphi, \quad (2.38)$$

$$xD_{zj}da_j = R^3 (\sin^2 \theta \cos \theta \cos \varphi D_{rr} - \sin^3 \theta \cos \varphi D_{\theta r}) d\theta d\varphi, \quad (2.39)$$

$$xD_{yj}da_j = R^3 (\sin^3 \theta \cos \varphi \sin \varphi D_{rr} + \sin^2 \theta \cos \theta \sin \varphi \cos \varphi D_{\theta r} + \sin^2 \theta \cos^2 \varphi D_{\varphi r}) d\theta d\varphi, \quad (2.40)$$

$$yD_{xj}da_j = R^3 (\sin^3 \theta \sin \varphi \cos \varphi D_{rr} + \sin^2 \theta \cos \theta \cos \varphi \sin \varphi D_{\theta r} - \sin^2 \theta \sin^2 \varphi D_{\varphi r}) d\theta d\varphi, \quad (2.41)$$

y así,

$$\begin{aligned} yD_{zj}da_j - zD_{yj}da_j &= R^3 [(-\sin^3 \theta \sin \varphi - \sin \theta \cos^2 \theta \sin \varphi) D_{\theta r} - \sin \theta \cos \theta \cos \varphi D_{\varphi r}] d\theta d\varphi \\ &= -R^3 \sin \theta [\sin \varphi (\sin^2 \theta + \cos^2 \theta) D_{\theta r} + \cos \theta \cos \varphi D_{\varphi r}] d\theta d\varphi \\ &= -R^3 \sin \theta [\sin \varphi D_{\theta r} + \cos \theta \cos \varphi D_{\varphi r}] d\theta d\varphi, \end{aligned} \quad (2.42)$$

$$\begin{aligned} zD_{xj}da_j - xD_{zj}da_j &= R^3 [(\sin \theta \cos^2 \theta \cos \varphi + \sin^3 \theta \cos \varphi) D_{\theta r} - \sin \theta \cos \theta \sin \varphi D_{\varphi r}] d\theta d\varphi \\ &= R^3 \sin \theta [\cos \varphi (\sin^2 \theta + \cos^2 \theta) D_{\theta r} - \cos \theta \sin \varphi D_{\varphi r}] d\theta d\varphi \\ &= R^3 \sin \theta [\cos \varphi D_{\theta r} - \cos \theta \sin \varphi D_{\varphi r}] d\theta d\varphi \end{aligned} \quad (2.43)$$

$$\begin{aligned} xD_{yj}da_j - yD_{xj}da_j &= R^3 [\sin^2 \theta \cos^2 \varphi D_{\varphi r} + \sin^2 \theta \sin^2 \varphi D_{\varphi r}] d\theta d\varphi \\ &= R^3 \sin^2 \theta [\sin^2 \varphi + \cos^2 \varphi] D_{\varphi r} d\theta d\varphi \\ &= R^3 \sin^2 \theta D_{\varphi r} d\theta d\varphi, \end{aligned} \quad (2.44)$$

de tal forma que, al sustituir las Ecs. (2.42)-(2.44) en las Ecs. (2.28)-(2.30) se obtiene que

$$\begin{aligned} \mathcal{L}_x(\omega) &= -\frac{R^3}{4\pi^2} \int_0^\pi \int_0^{2\pi} \sin \theta [\sin \varphi D_{\theta r} + \cos \theta \cos \varphi D_{\varphi r}] d\varphi d\theta, \\ \mathcal{L}_y(\omega) &= \frac{R^3}{4\pi^2} \int_0^\pi \int_0^{2\pi} \sin \theta [\cos \varphi D_{\theta r} - \cos \theta \sin \varphi D_{\varphi r}] d\varphi d\theta, \\ \mathcal{L}_z(\omega) &= \frac{R^3}{4\pi^2} \int_0^\pi \int_0^{2\pi} \sin^2 \theta D_{\varphi r} d\varphi d\theta. \end{aligned} \quad (2.45)$$

Entonces, sustituyendo las Ecs. (2.45) en la Ec. (2.26) se obtiene que las componentes cartesianas de la transferencia de momento angular del electrón a la nanopartícula son

$$\begin{aligned} \Delta L_x &= -\frac{R^3}{4\pi^2} \int_0^\infty \int_0^\pi \int_0^{2\pi} \sin \theta [\sin \varphi D_{\theta r} + \cos \theta \cos \varphi D_{\varphi r}] d\varphi d\theta d\omega, \\ \Delta L_y &= \frac{R^3}{4\pi^2} \int_0^\infty \int_0^\pi \int_0^{2\pi} \sin \theta [\cos \varphi D_{\theta r} - \cos \theta \sin \varphi D_{\varphi r}] d\varphi d\theta d\omega, \\ \Delta L_z &= \frac{R^3}{4\pi^2} \int_0^\infty \int_0^\pi \int_0^{2\pi} \sin^2 \theta D_{\varphi r} d\varphi d\theta d\omega. \end{aligned} \quad (2.46)$$

Es interesante notar que en las Ecs. (2.46) solamente aparecen las entradas $D_{\theta r}$ y $D_{\varphi r}$ del tensor $\overleftrightarrow{\mathbf{D}}$, las cuales, de acuerdo a la Ec. (2.25), están dadas por

$$D_{\theta r} = \operatorname{Re} [\tilde{E}_\theta \tilde{E}_r^* + \tilde{B}_\theta \tilde{B}_r^*], \quad (2.47)$$

$$D_{\varphi r} = \operatorname{Re} [\tilde{E}_\varphi \tilde{E}_r^* + \tilde{B}_\varphi \tilde{B}_r^*]. \quad (2.48)$$

Como puede apreciarse en la Fig. 2.1, este problema tiene simetría ante rotaciones alrededor del eje z . Por lo anterior, las fuerzas y, por lo tanto, el momento lineal que el electrón transfiere a la NP no tienen componentes en la dirección $\hat{\mathbf{e}}_y$ [10, 30, 35]. En consecuencia, la torca (respecto al centro de la NP) y, por lo tanto, el momento angular transferido a la NP no pueden tener componentes en $\hat{\mathbf{e}}_x$ ni en $\hat{\mathbf{e}}_z$. Así, por la simetría, las Ecs. (2.46) se pueden reexpresar como

$$\begin{aligned} \Delta L_x &= 0, \\ \Delta L_y &= \frac{R^3}{4\pi^2} \int_0^\infty \int_0^\pi \int_0^{2\pi} \sin \theta [\cos \varphi D_{\theta r} - \cos \theta \sin \varphi D_{\varphi r}] d\varphi d\theta d\omega, \\ \Delta L_z &= 0, \end{aligned} \quad (2.49)$$

es decir,

$$\Delta \vec{\mathbf{L}}^{\text{mec}} = \Delta L \hat{\mathbf{e}}_y, \quad (2.50)$$

en donde, utilizando las Ecs. (2.47)- (2.49),

$$\Delta L = \frac{R^3}{4\pi^2} \int_0^\infty \int_0^\pi \int_0^{2\pi} \sin \theta (\cos \varphi \operatorname{Re} [\tilde{E}_\theta \tilde{E}_r^* + \tilde{B}_\theta \tilde{B}_r^*] - \cos \theta \sin \varphi \operatorname{Re} [\tilde{E}_\varphi \tilde{E}_r^* + \tilde{B}_\varphi \tilde{B}_r^*]) d\varphi d\theta d\omega. \quad (2.51)$$

Definiendo la *contribución eléctrica* (ΔL_E) a la TMA como la porción de la Ec. (2.51) en donde únicamente aparece el campo eléctrico, es decir,

$$\Delta L_E = \frac{R^3}{4\pi^2} \int_0^\infty \int_0^\pi \int_0^{2\pi} \sin \theta (\cos \varphi \operatorname{Re} [\tilde{E}_\theta \tilde{E}_r^*] - \cos \theta \sin \varphi \operatorname{Re} [\tilde{E}_\varphi \tilde{E}_r^*]) d\varphi d\theta d\omega, \quad (2.52)$$

y, análogamente, la *contribución magnética* (ΔL_M) a la TMA como

$$\Delta L_M = \frac{R^3}{4\pi^2} \int_0^\infty \int_0^\pi \int_0^{2\pi} \sin \theta (\cos \varphi \operatorname{Re} [\tilde{B}_\theta \tilde{B}_r^*] - \cos \theta \sin \varphi \operatorname{Re} [\tilde{B}_\varphi \tilde{B}_r^*]) d\varphi d\theta d\omega, \quad (2.53)$$

es posible reexpresar la Ec. (2.51) como

$$\Delta L = \Delta L_E + \Delta L_M. \quad (2.54)$$

Como se ha discutido antes, los campos electromagnéticos que aparecen en las ecuaciones que se han presentado en esta sección y, en particular, en las Ecs. (2.51)-(2.54), son los campos electromagnéticos

totales, producidos tanto por el electrón como por la nanopartícula. Es decir, si $\vec{\mathbf{E}}^{\text{ext}}$ y $\vec{\mathbf{B}}^{\text{ext}}$ son los campos EMs producidos por el electrón, y $\vec{\mathbf{E}}^{\text{esp}}$, $\vec{\mathbf{B}}^{\text{esp}}$ los campos EMs esparcidos por la nanopartícula, entonces

$$\vec{\mathbf{E}}^{\text{total}} = \vec{\mathbf{E}}^{\text{ext}} + \vec{\mathbf{E}}^{\text{esp}} \quad \text{y} \quad \vec{\mathbf{B}}^{\text{total}} = \vec{\mathbf{B}}^{\text{ext}} + \vec{\mathbf{B}}^{\text{esp}}. \quad (2.55)$$

De este modo, la Ec. (2.52), se puede reexpresar como

$$\Delta L_E = \Delta L_E^{\text{ext-ext}} + \Delta L_E^{\text{esp-esp}} + \Delta L_E^{\text{ext-esp}}, \quad (2.56)$$

en donde

$$\Delta L_E^{\text{ext-ext}} = \frac{R^3}{4\pi^2} \int_0^\infty \int_0^\pi \int_0^{2\pi} \sin \theta \left(\cos \varphi \operatorname{Re} [\tilde{E}_\theta^{\text{ext}} \tilde{E}_r^{\text{ext}*}] - \cos \theta \sin \varphi \operatorname{Re} [\tilde{E}_\varphi^{\text{ext}} \tilde{E}_r^{\text{ext}*}] \right) d\varphi d\theta d\omega, \quad (2.57)$$

$$\Delta L_E^{\text{esp-esp}} = \frac{R^3}{4\pi^2} \int_0^\infty \int_0^\pi \int_0^{2\pi} \sin \theta \left(\cos \varphi \operatorname{Re} [\tilde{E}_\theta^{\text{esp}} \tilde{E}_r^{\text{esp}*}] - \cos \theta \sin \varphi \operatorname{Re} [\tilde{E}_\varphi^{\text{esp}} \tilde{E}_r^{\text{esp}*}] \right) d\varphi d\theta d\omega, \quad (2.58)$$

$$\begin{aligned} \Delta L_E^{\text{ext-esp}} = & \frac{R^3}{4\pi^2} \int_0^\infty \int_0^\pi \int_0^{2\pi} \sin \theta \left(\cos \varphi \operatorname{Re} [\tilde{E}_\theta^{\text{ext}} \tilde{E}_r^{\text{esp}*} + \tilde{E}_\theta^{\text{esp}} \tilde{E}_r^{\text{ext}*}] - \right. \\ & \left. \cos \theta \sin \varphi \operatorname{Re} [\tilde{E}_\varphi^{\text{ext}} \tilde{E}_r^{\text{esp}*} + \tilde{E}_\varphi^{\text{esp}} \tilde{E}_r^{\text{ext}*}] \right) d\varphi d\theta d\omega. \end{aligned} \quad (2.59)$$

Del mismo modo, la Ec. (2.53) se puede reexpresar como

$$\Delta L_M = \Delta L_M^{\text{ext-ext}} + \Delta L_M^{\text{esp-esp}} + \Delta L_M^{\text{ext-esp}}, \quad (2.60)$$

en donde

$$\Delta L_M^{\text{ext-ext}} = \frac{R^3}{4\pi^2} \int_0^\infty \int_0^\pi \int_0^{2\pi} \sin \theta \left(\cos \varphi \operatorname{Re} [\tilde{B}_\theta^{\text{ext}} \tilde{B}_r^{\text{ext}*}] - \cos \theta \sin \varphi \operatorname{Re} [\tilde{B}_\varphi^{\text{ext}} \tilde{B}_r^{\text{ext}*}] \right) d\varphi d\theta d\omega, \quad (2.61)$$

$$\Delta L_M^{\text{esp-esp}} = \frac{R^3}{4\pi^2} \int_0^\infty \int_0^\pi \int_0^{2\pi} \sin \theta \left(\cos \varphi \operatorname{Re} [\tilde{B}_\theta^{\text{esp}} \tilde{B}_r^{\text{esp}*}] - \cos \theta \sin \varphi \operatorname{Re} [\tilde{B}_\varphi^{\text{esp}} \tilde{B}_r^{\text{esp}*}] \right) d\varphi d\theta d\omega, \quad (2.62)$$

$$\begin{aligned} \Delta L_M^{\text{ext-esp}} = & \frac{R^3}{4\pi^2} \int_0^\infty \int_0^\pi \int_0^{2\pi} \sin \theta \left(\cos \varphi \operatorname{Re} [\tilde{B}_\theta^{\text{ext}} \tilde{B}_r^{\text{esp}*} + \tilde{B}_\theta^{\text{esp}} \tilde{B}_r^{\text{ext}*}] - \right. \\ & \left. \cos \theta \sin \varphi \operatorname{Re} [\tilde{B}_\varphi^{\text{ext}} \tilde{B}_r^{\text{esp}*} + \tilde{B}_\varphi^{\text{esp}} \tilde{B}_r^{\text{ext}*}] \right) d\varphi d\theta d\omega. \end{aligned} \quad (2.63)$$

En consecuencia, es posible reexpresar la Ec. (2.54) como

$$\Delta L = \Delta L^{\text{ext-ext}} + \Delta L^{\text{esp-esp}} + \Delta L^{\text{ext-esp}}, \quad (2.64)$$

en donde

$$\Delta L^{\text{ext-ext}} = \Delta L_E^{\text{ext-ext}} + \Delta L_M^{\text{ext-ext}}, \quad (2.65)$$

$$\Delta L^{\text{esp-esp}} = \Delta L_E^{\text{esp-esp}} + \Delta L_M^{\text{esp-esp}}, \quad (2.66)$$

$$\Delta L^{\text{ext-esp}} = \Delta L_E^{\text{ext-esp}} + \Delta L_M^{\text{ext-esp}}. \quad (2.67)$$

Es interesante considerar el caso en el que no hay ninguna nanopartícula, es decir, el caso de un electrón viajando en el vacío con velocidad constante. En ese caso, nada altera el movimiento del electrón por lo que no pierde energía, momento lineal ni momento angular ($\Delta L = 0$). Ahora bien, si se aplica

la metodología aquí presentada al caso del electrón viajando en vacío, al no haber NP, se encuentra, utilizando la Ec. (2.64), que $\Delta L = \Delta L^{\text{ext-ext}}$. Es decir, $\Delta L^{\text{ext-ext}}$ es igual al momento angular que pierde un electrón viajando en vacío. Por lo tanto, de manera general, se cumple que

$$\boxed{\Delta L^{\text{ext-ext}} = 0,} \quad (2.68)$$

y así, es posible reexpresar la Ec. (2.64) como

$$\Delta L = \Delta L^{\text{esp-esp}} + \Delta L^{\text{ext-esp}}. \quad (2.69)$$

Por lo tanto, utilizando las Ecs. (2.50), (2.66), (2.67) y (2.69), finalmente se encuentra que

Transferencia de momento angular de un electrón rápido a una nanopartícula esférica

$$\Delta \vec{L}^{\text{mec}} = \left(\Delta L_E^{\text{esp-esp}} + \Delta L_M^{\text{esp-esp}} + \Delta L_E^{\text{ext-esp}} + \Delta L_M^{\text{ext-esp}} \right) \hat{\mathbf{e}}_y. \quad (2.70)$$

Dada la complejidad de las integrales que aparecen en la Ec. (2.70), es necesario utilizar métodos numéricos para calcularlas. Recientemente, se ha mostrado que, en el problema de la transferencia de momento lineal de un electrón rápido a una nanopartícula esférica, la convergencia numérica es crucial [55]. De hecho, en la Ref. [55] se muestra que se han publicado resultados con comportamientos físicos incorrectos al utilizar métodos de integración convencionales sin asegurar la convergencia numérica. Debido a esto, para calcular las integrales que aparecen en la Ec. (2.70) es conveniente utilizar los métodos numéricos conocidos como *cubaturas* [56–59], los cuales representan el estado del arte en el cálculo de integrales múltiples y con los cuales es posible tener un control delicado del error que se comete al integrar. En este trabajo, para calcular la TMA a partir de la Ec. (2.70), se hizo un programa en el lenguaje *Julia*, disponible en el repositorio [60], utilizando la *rutina de cubatura en regiones hiperrectangulares de integración* (CUHRE por sus siglas en inglés). En el Apéndice A se presentan los detalles de los métodos numéricos utilizados en este trabajo, incluyendo una discusión sobre CUHRE. Todos los resultados reportados en este trabajo han sido calculados asegurando que sus primeras tres cifras significativas sean correctas.

Para continuar, es necesario discutir sobre los campos electromagnéticos involucrados en este problema. En las secciones siguientes se presentan e ilustran los campos electromagnéticos producidos por el electrón y los esparcidos por la nanopartícula.

2.3. Campos electromagnéticos producidos por un electrón viajando con velocidad constante

El campo electromagnético de una carga puntual q_e que viaja con una velocidad constante, de magnitud v , se puede encontrar en textos clásicos de electromagnetismo, por ejemplo [61]. Al adaptar la solución al problema del electrón viajando en vacío en la forma en que se ilustra en la Fig. 2.1 (sin considerar a la

nanopartícula), se obtiene que los campos electromagnéticos externos son [62]

$$\vec{\mathbf{E}}^{\text{ext}}(\vec{\mathbf{r}}; t) = \frac{q_e \gamma [(x - b)\hat{\mathbf{e}}_x + y\hat{\mathbf{e}}_y + (z - vt)\hat{\mathbf{e}}_z]}{\left[\gamma^2(z - vt)^2 + R^2\right]^{\frac{3}{2}}} \quad (2.71)$$

y

$$\vec{\mathbf{B}}^{\text{ext}}(\vec{\mathbf{r}}; t) = \frac{q_e \gamma v [-y\hat{\mathbf{e}}_x + (x - b)\hat{\mathbf{e}}_y]}{c \left[\gamma^2(z - vt)^2 + R^2\right]^{\frac{3}{2}}}, \quad (2.72)$$

en donde

$$\gamma = \frac{1}{\sqrt{1 - \left(\frac{v}{c}\right)^2}} \quad \text{y} \quad R^2 = (x - b)^2 + y^2. \quad (2.73)$$

La transformada de Fourier en el tiempo de los campos EMs dados por las Ecs. (2.71) y (2.72) es [62]³

$$\vec{\mathbf{E}}^{\text{ext}}(\vec{\mathbf{r}}; \omega) = 2 \frac{q_e e^{i\frac{\omega z}{v}}}{v^2 \gamma} \left\{ \left[\frac{|\omega|}{R} K_1 \left(\frac{|\omega| R}{\gamma v} \right) \right] \left[(x - b)\hat{\mathbf{e}}_x + y\hat{\mathbf{e}}_y \right] - \frac{i\omega}{\gamma} K_0 \left(\frac{|\omega| R}{\gamma v} \right) \hat{\mathbf{e}}_z \right\} \quad (2.74)$$

y

$$\vec{\mathbf{B}}^{\text{ext}}(\vec{\mathbf{r}}; \omega) = 2 \frac{q_e e^{i\frac{\omega z}{v}}}{v \gamma c} \left\{ \left[\frac{|\omega|}{R} K_1 \left(\frac{|\omega| R}{\gamma v} \right) \right] \left[-y\hat{\mathbf{e}}_x + (x - b)\hat{\mathbf{e}}_y \right] \right\}, \quad (2.75)$$

en donde $K_0(x)$ y $K_1(x)$ son las funciones de Bessel modificadas de orden cero y uno, respectivamente [63].

Para ilustrar el comportamiento de los campos electromagnéticos externos, en la Fig. 2.2 se han graficado, en unidades atómicas (u.a.), las magnitudes de cada componente cartesiana de los campos dados por las Ecs. (2.74) y (2.75) producidos por un electrón que viaja con una rapidez $v = 0.5c$ y con un parámetro de impacto $b = 5 \text{ nm}$ (respecto al origen del sistema de coordenadas, ver Fig. 2.1), evaluados en el punto $\vec{\mathbf{r}}_0 = (1 \text{ nm})\hat{\mathbf{e}}_y$, en la geometría de la Fig. 2.1. Se aprecia que tanto el campo eléctrico, Fig. 2.2(a), como el campo magnético, Fig. 2.2(b), tienden a cero conforme aumenta la frecuencia. Es precisamente por esto que los electrones del haz de un STEM se consideran *fuentes evanescentes de “luz blanca”* [10, 62].

2.4. Campos electromagnéticos esparcidos por una nanopartícula esférica

Los campos electromagnéticos externos, producidos por el electrón, inducen densidades de carga y corriente en la nanopartícula, las cuales producen un campo EM adicional al externo, llamado *campo esparcido*, siendo el campo EM total la superposición de ambos.

El problema de calcular el campo electromagnético resultante de la interacción de una onda plana con una partícula esférica fue resuelto por Gustav Mie en 1908 y, en su honor, se conoce a dicha solución como

³Para simplificar la notación, de ahora en adelante se omite la tilde “~” en la transformada de Fourier de los campos electromagnéticos.

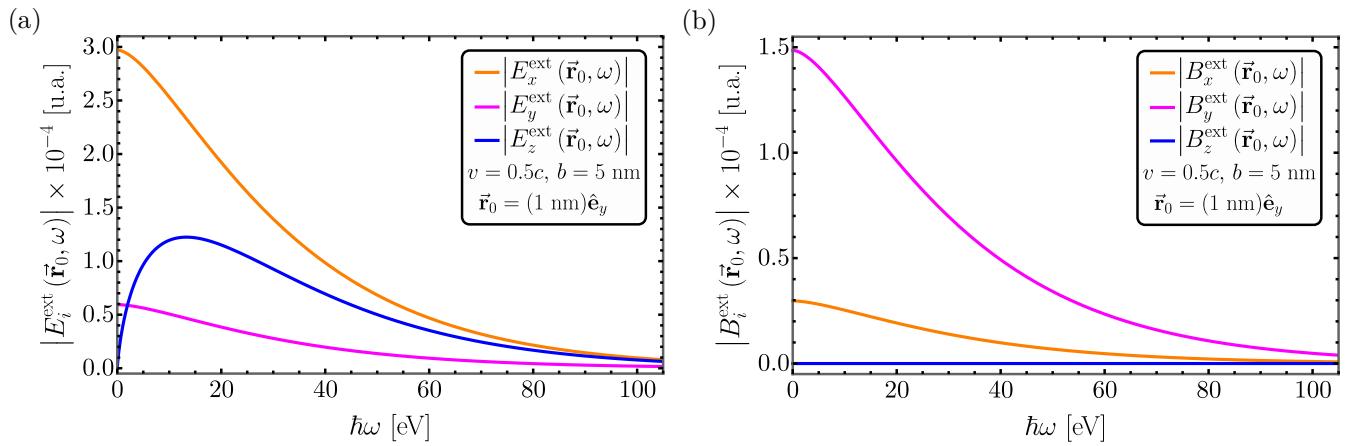


Figura 2.2: Magnitud, en unidades atómicas (u.a.), de las componentes cartesianas (a) del campo eléctrico y (b) del campo magnético producido por un electrón que viaja con una rapidez constante $v = 0.5c$ y con un parámetro de impacto $b = 5$ nm, evaluados en el punto $\vec{r}_0 = (1 \text{ nm})\hat{\mathbf{e}}_y$, en la geometría mostrada en la Fig. 2.1.

*Teoría de Mie*⁴. La *solución de Mie* consiste en resolver las ecuaciones de Maxwell utilizando la geometría esférica del problema. Se expresan los campos electromagnéticos externos y esparcidos en la base de los *armónicos esféricos vectoriales*⁵ y se determinan los coeficientes de la expansión mediante las condiciones de frontera que satisface el campo electromagnético sobre la superficie de la partícula esférica.

Aún cuando el campo EM externo no sea una onda plana, es posible seguir la misma metodología que la solución original de Mie [65], lo cual se conoce como *solución de Mie extendida*. En este trabajo, el campo EM externo corresponde al producido por el electrón, Ecs. (2.74) y (2.75).

2.4.1. Expresiones esféricas de los campos electromagnéticos externos y esparcidos

En la solución de Mie extendida para este problema, el campo EM externo, producido por el electrón, y el campo EM esparcido por la NP se expresan en una base esférica, construida mediante funciones escalares auxiliares que satisfacen la ecuación de Helmholtz. Los coeficientes de la expansión de los campos EMs en dicha base se obtienen mediante las condiciones de frontera que cumplen los campos EMs, externo y esparcido, en la superficie de la nanopartícula. En particular, para el cálculo de la transferencia de momento angular –ver Ecs. (2.45) y (2.70)– sólo son de interés los campos EMs sobre la superficie de integración, es decir, el campo externo y el esparcido evaluados fuera de la nanopartícula, ver Fig 2.1.

Los campos EMs han sido obtenidos en la Ref. [65] (en el Apéndice B se encuentran los detalles del cálculo). El campo eléctrico externo, en la base esférica, está dado por:

⁴Este problema fue resuelto casi al mismo tiempo y de manera independiente por Peter Debye, por un lado, y por Ludvig Lorenz, por otro [64]. Sin embargo, el nombre prevaleciente en la literatura es el de teoría de Mie [64]. En este trabajo nos referiremos a la teoría de Mie como la *solución de Mie*.

⁵Los armónicos esféricos vectoriales son una base de campos vectoriales que generan todas las soluciones de las ecuaciones de Maxwell en geometría esférica. Se construyen a partir del producto del vector de posición \vec{r} con funciones escalares auxiliares, las cuales satisfacen la ecuación escalar de Helmholtz [64].

$$\begin{aligned}
\vec{\mathbf{E}}^{\text{ext}}(r, \theta, \varphi; \omega) = & \sum_{\ell=1}^{\infty} \sum_{m=-\ell}^{\ell} e^{im\varphi} \left(\hat{\mathbf{e}}_r B^E \ell(\ell+1) P_{\ell}^m(\cos \theta) \frac{j_{\ell}(k_0 r)}{k_0 r} - \right. \\
& \hat{\mathbf{e}}_{\theta} \left\{ A^M \frac{m}{\sin \theta} j_{\ell}(k_0 r) P_{\ell}^m(\cos \theta) + B^E \left[(\ell+1) \frac{\cos \theta}{\sin \theta} P_{\ell}^m(\cos \theta) - \right. \right. \\
& \left. \left. \frac{(\ell-m+1)}{\sin \theta} P_{\ell+1}^m(\cos \theta) \right] \left[(\ell+1) \frac{j_{\ell}(k_0 r)}{k_0 r} - j_{\ell+1}(k_0 r) \right] \right\} + \\
& (i) \hat{\mathbf{e}}_{\varphi} \left\{ A^M j_{\ell}(k_0 r) \left[(\ell+1) \frac{\cos \theta}{\sin \theta} P_{\ell}^m(\cos \theta) - \frac{(\ell-m+1)}{\sin \theta} P_{\ell+1}^m(\cos \theta) \right] + \right. \\
& \left. B^E \frac{m}{\sin \theta} P_{\ell}^m(\cos \theta) \left[(\ell+1) \frac{j_{\ell}(k_0 r)}{k_0 r} - j_{\ell+1}(k_0 r) \right] \right\},
\end{aligned} \tag{2.76}$$

mientras que el campo magnético externo es

$$\begin{aligned}
\vec{\mathbf{B}}^{\text{ext}}(r, \theta, \varphi; \omega) = & \sum_{\ell=1}^{\infty} \sum_{m=-\ell}^{\ell} e^{im\varphi} \left(\hat{\mathbf{e}}_r A^M \ell(\ell+1) P_{\ell}^m(\cos \theta) \frac{j_{\ell}(k_0 r)}{k_0 r} + \right. \\
& \hat{\mathbf{e}}_{\theta} \left\{ B^E \frac{m}{\sin \theta} j_{\ell}(k_0 r) P_{\ell}^m(\cos \theta) - A^M \left[(\ell+1) \frac{\cos \theta}{\sin \theta} P_{\ell}^m(\cos \theta) - \right. \right. \\
& \left. \left. \frac{(\ell-m+1)}{\sin \theta} P_{\ell+1}^m(\cos \theta) \right] \left[(\ell+1) \frac{j_{\ell}(k_0 r)}{k_0 r} - j_{\ell+1}(k_0 r) \right] \right\} + \\
& (i) \hat{\mathbf{e}}_{\varphi} \left\{ A^M \frac{m}{\sin \theta} P_{\ell}^m(\cos \theta) \left[(\ell+1) \frac{j_{\ell}(k_0 r)}{k_0 r} - j_{\ell+1}(k_0 r) \right] - \right. \\
& \left. B^E j_{\ell}(k_0 r) \left[(\ell+1) \frac{\cos \theta}{\sin \theta} P_{\ell}^m(\cos \theta) - \frac{(\ell-m+1)}{\sin \theta} P_{\ell+1}^m(\cos \theta) \right] \right\}.
\end{aligned} \tag{2.77}$$

Para los campos EMs esparcidos por la nanopartícula se obtiene

$$\begin{aligned}
\vec{\mathbf{E}}^{\text{esp}}(r, \theta, \varphi; \omega) = & \sum_{\ell=1}^{\infty} \sum_{m=-\ell}^{\ell} e^{im\varphi} \left(\hat{\mathbf{e}}_r D^E \ell(\ell+1) P_{\ell}^m(\cos \theta) \frac{h_{\ell}^{(+)}(k_0 r)}{k_0 r} \right. \\
& - \hat{\mathbf{e}}_{\theta} \left\{ C^M \frac{m}{\sin \theta} h_{\ell}^{(+)}(k_0 r) P_{\ell}^m(\cos \theta) + D^E \left[(\ell+1) \frac{\cos \theta}{\sin \theta} P_{\ell}^m(\cos \theta) - \right. \right. \\
& \left. \left. \frac{(\ell-m+1)}{\sin \theta} P_{\ell+1}^m(\cos \theta) \right] \left[(\ell+1) \frac{h_{\ell}^{(+)}(k_0 r)}{k_0 r} - h_{\ell+1}^{(+)}(k_0 r) \right] \right\} + \\
& (i) \hat{\mathbf{e}}_{\varphi} \left\{ C^M h_{\ell}^{(+)}(k_0 r) \left[(\ell+1) \frac{\cos \theta}{\sin \theta} P_{\ell}^m(\cos \theta) - \right. \right. \\
& \left. \left. \frac{(\ell-m+1)}{\sin \theta} P_{\ell+1}^m(\cos \theta) \right] + D^E \frac{m}{\sin \theta} P_{\ell}^m(\cos \theta) \left[(\ell+1) \frac{h_{\ell}^{(+)}(k_0 r)}{k_0 r} - \right. \right. \\
& \left. \left. h_{\ell+1}^{(+)}(k_0 r) \right] \right\}
\end{aligned} \tag{2.78}$$

y

$$\vec{B}^{\text{esp}}(r, \theta, \varphi; \omega) = \sum_{\ell=1}^{\infty} \sum_{m=-\ell}^{\ell} e^{im\varphi} \left(\hat{\mathbf{e}}_r C^M \ell(\ell+1) P_{\ell}^m(\cos \theta) \frac{h_{\ell}^{(+)}(k_0 r)}{k_0 r} + \right. \\ \hat{\mathbf{e}}_{\theta} \left\{ D^E \frac{m}{\sin \theta} h_{\ell}^{(+)}(k_0 r) P_{\ell}^m(\cos \theta) - C^M \left[(\ell+1) \frac{\cos \theta}{\sin \theta} P_{\ell}^m(\cos \theta) - \right. \right. \\ \left. \left. \frac{(\ell-m+1)}{\sin \theta} P_{\ell+1}^m(\cos \theta) \right] \left[(\ell+1) \frac{h_{\ell}^{(+)}(k_0 r)}{k_0 r} - h_{\ell+1}^{(+)}(k_0 r) \right] \right\} + \\ (i) \hat{\mathbf{e}}_{\varphi} \left\{ C^M \frac{m}{\sin \theta} P_{\ell}^m(\cos \theta) \left[(\ell+1) \frac{h_{\ell}^{(+)}(k_0 r)}{k_0 r} - h_{\ell+1}^{(+)}(k_0 r) \right] - \right. \\ \left. \left. D^E h_{\ell}^{(+)}(k_0 r) \left[(\ell+1) \frac{\cos \theta}{\sin \theta} P_{\ell}^m(\cos \theta) - \frac{(\ell-m+1)}{\sin \theta} P_{\ell+1}^m(\cos \theta) \right] \right\} \right), \quad (2.79)$$

en donde $k_0 = \omega/c$, $j_{\ell}(x)$ son las funciones de Bessel esféricas, $h_{\ell}^{(+)}(x)$ son las funciones de Hankel esféricas definidas por Messiah⁶ [66] y $P_{\ell}^m(x)$ son las funciones asociadas de Legendre [63]. Los coeficientes A^M , B^E , C^M y D^E se encuentran definidos en las Ecs. (B.23) y (B.33) del Apéndice B.

Para ilustrar la naturaleza del campo electromagnético esparcido, en la Fig. 2.3 se presentan gráficas de la intensidad del campo EM esparcido⁷ por una nanopartícula esférica de aluminio⁸, con radio $a = 1 \text{ nm}$, para el caso de un electrón con rapidez $v = 0.5c$ y parámetro de impacto $b = 1.5 \text{ nm}$.

Con el fin de resaltar la simetría de cada *contribución multipolar* del campo electromagnético esparcido, es decir, las contribuciones de cada valor del índice ℓ en las Ecs. (2.78) y (2.79), en la Fig. 2.3 se presenta la intensidad del campo electromagnético esparcido en el plano $z = 0$ (ver Fig. 2.1) para diferentes valores de ℓ , cada uno evaluado en la frecuencia de resonancia plasmónica asociada⁹. En las Figs. 2.3(a), 2.3(c) y 2.3(e) se presenta la intensidad del campo eléctrico esparcido para $\ell = 1, 2$ y 3 respectivamente, mientras que en las Figs. 2.3(b), 2.3(d) y 2.3(f) se presentan las correspondientes del campo \vec{H}^{esp} ¹⁰. En las Figs. 2.3(a) y 2.3(b) se aprecia que $\ell = 1$ corresponde a una simetría de dipolo; en las Figs. 2.3(c) y 2.3(d) se observa que $\ell = 2$ corresponde al cuadrupolo y en las Figs. 2.3(e) y 2.3(f) se aprecia que $\ell = 3$ corresponde al octupolo (el lóbulo faltante se encuentra fuera del plano $z = 0$).

⁶ $h_{\ell}^{(+)}(x) = i h_{\ell}^{(1)}(x)$ en donde $h_{\ell}^{(1)}(x)$ son las funciones de Hankel esféricas usuales [63]. Se puede encontrar información sobre las funciones $h_{\ell}^{(+)}(x)$ en la pág. 356 y en la sección II del apéndice B de la Ref. [66].

⁷Se utilizan unidades atómicas (a. u. por sus siglas en inglés) para la intensidad de los campos electromagnéticos.

⁸En este trabajo, la función dieléctrica del aluminio corresponde al modelo de Drude:

$$\varepsilon(\omega) = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega(\omega + i\Gamma)}$$

con $\hbar\omega_p = 13.14 \text{ eV}$ y $\hbar\Gamma = 0.197 \text{ eV}$ [67].

⁹Dado el modelo de Drude, la frecuencia de resonancia del modo plasmónico ℓ , en el límite de partícula pequeña y despreciando el amortiguamiento Γ , es $\omega_{\ell} = \omega_p \sqrt{l/(2\ell+1)}$ [68].

¹⁰En unidades cgs y, por lo tanto, en unidades atómicas gaussianas, $\vec{B} = \vec{H}$ en el vacío [53]. De este modo, fuera de la nanopartícula se tiene efectivamente la gráfica del campo magnético. La expresión para el campo \vec{H} de este problema se puede encontrar en [65].

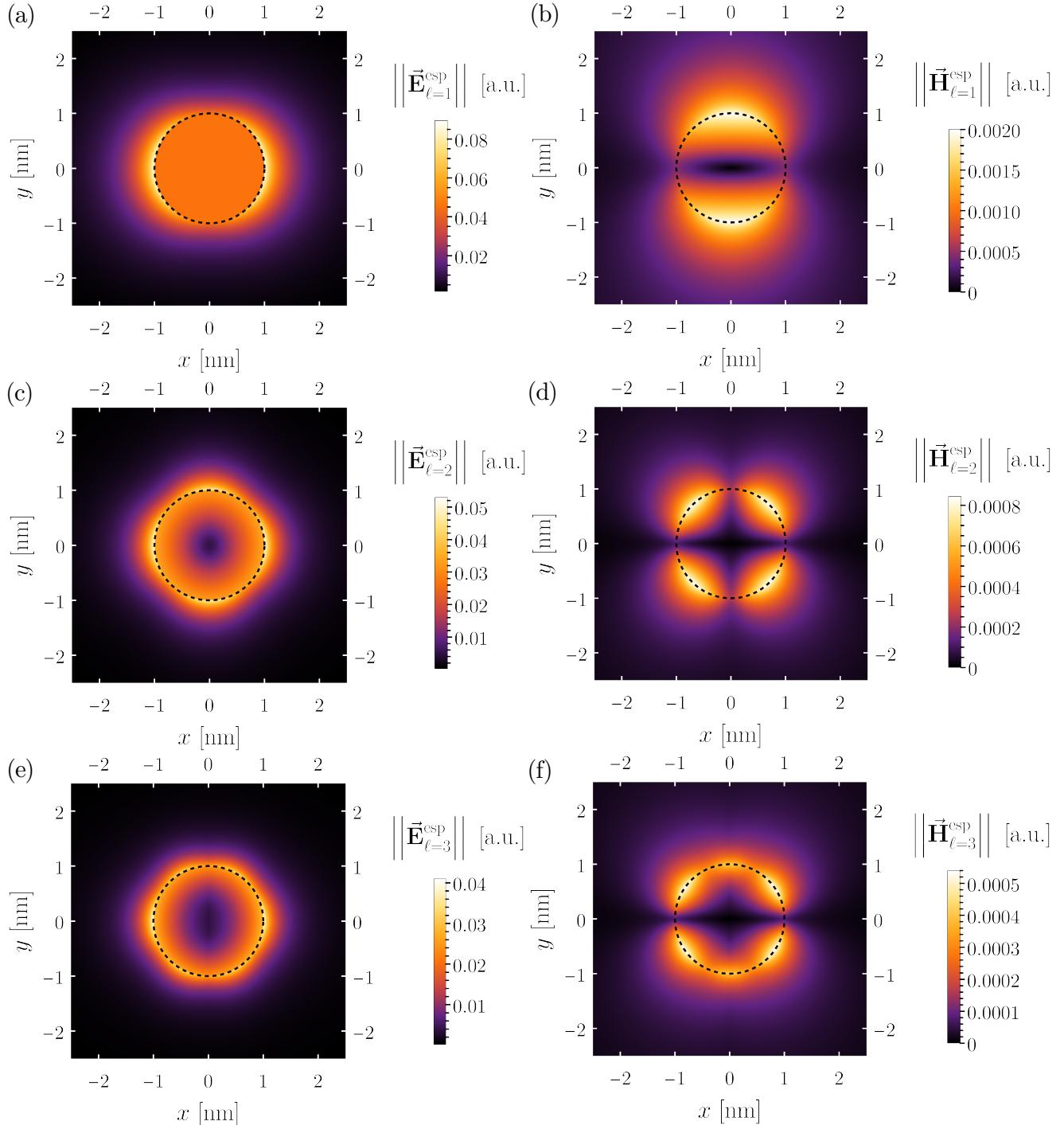


Figura 2.3: Gráficas de la intensidad de los campos electromagnéticos esparcidos por una nanopartícula esférica de aluminio, de 1 nm de radio, en presencia de un electrón con rapidez $v = 0.5c$ y parámetro de impacto $b = 1.5$ nm, para distintos valores del índice ℓ en las Ecs. (2.78) y (2.79) evaluados en la frecuencia de resonancia plasmónica asociada a ℓ : (a) $\|\vec{E}^{\text{esp}}\|$ para $\ell = 1$, (b) $\|\vec{H}^{\text{esp}}\|$ para $\ell = 1$, (c) $\|\vec{E}^{\text{esp}}\|$ para $\ell = 2$, (d) $\|\vec{H}^{\text{esp}}\|$ para $\ell = 2$, (e) $\|\vec{E}^{\text{esp}}\|$ para $\ell = 3$ y (f) $\|\vec{H}^{\text{esp}}\|$ para $\ell = 3$. En todas las gráficas anteriores se ha señalado la posición de la nanopartícula con líneas punteadas negras. Por completez, en las gráficas se ha incluido también la intensidad de los campos EMs internos (dentro de la NP), cuyas expresiones se pueden consultar en la Ref. [65]. Los campos EMs internos no son necesarios para los cálculos de la transferencia de momento angular.

2.5. Transferencia de momento angular de un electrón rápido a nanopartículas con forma arbitraria

Es posible extender la metodología aquí presentada a nanopartículas más generales. Aunque la simetría que permite deducir las Ecs. (2.49) no se cumple en el caso general, las Ecs. (2.45) y (2.46) son válidas para cualquier nanopartícula.

El cambio más importante al considerar NPs con formas no esféricas es el campo electromagnético esparcido por ellas. Desafortunadamente, salvo para un número limitado de casos, el campo esparcido no puede determinarse analíticamente [64].

Sin embargo, en algunos casos, podría ser posible calcular numéricamente el campo electromagnético esparcido por una NP arbitraria, utilizando algún método electrodinámico computacional aunque, en general, la demanda de recursos computacionales puede ser costosa [69]. Ahora bien, existe un caso de interés que admite una solución analítica para nanopartículas no esféricas arbitrarias: el caso límite de nanopartículas pequeñas, para las cuales es válida la aproximación cuasiestática [70].

En el siguiente capítulo se construyen expresiones generales para la transferencia de momento angular, en la aproximación cuasiestática, de un electrón rápido a una nanopartícula pequeña, completamente arbitraria, y se estudia detalladamente el caso particular de nanopartículas esféricas pequeñas.

Capítulo 3

Transferencia de momento angular a nanopartículas pequeñas

En electrodinámica clásica, el límite de partícula pequeña (LPP), también conocido como límite cuasiestático, es una herramienta útil para estudiar la interacción de radiación y materia cuando ésta última se presenta en agregados cuyas dimensiones son mucho menores que la longitud de onda de la radiación [70]. Típicamente, el LPP proporciona una primera aproximación que captura muchos de los detalles importantes de la interacción. En particular, el LPP ha sido muy útil en el estudio de la interacción de los haces de electrones de TEM con las NPs [47, 71].

En este capítulo se presenta la teoría de la transferencia de momento angular de un electrón rápido a una nanopartícula pequeña arbitraria utilizando el LPP. Se estudia el caso particular de NPs esféricas con respuesta electromagnética homogénea e isótropa. Cabe mencionar que el contenido de este capítulo ya ha sido publicado por nosotros (ver Ref. [71]). Al igual que en la Ref. [71], los desarrollos teóricos de este capítulo se presentan en unidades SI.

3.1. Transferencia de momento angular de un electrón rápido a una nanopartícula pequeña arbitraria

En el LPP, la respuesta electromagnética de una partícula arbitraria, en presencia de campos electromagnéticos externos \vec{E}^{ext} y \vec{B}^{ext} , está dada por sus momentos dipolares, eléctrico (\vec{p}) y magnético (\vec{m}), inducidos. Para una NP arbitraria en el vacío, \vec{p} y \vec{m} están dados por [39, 70]

$$\vec{p}(\omega) = \varepsilon_0 \hat{\alpha}_E(\omega) \cdot \vec{E}^{\text{ext}}(\omega), \quad (3.1)$$

$$\vec{m}(\omega) = \frac{1}{\mu_0} \hat{\alpha}_M(\omega) \cdot \vec{B}^{\text{ext}}(\omega), \quad (3.2)$$

en donde ε_0 y μ_0 son la permitividad y la permeabilidad del vacío, respectivamente, $\hat{\alpha}_E$ es el tensor de polarizabilidad eléctrica de la NP y $\hat{\alpha}_M$ su tensor de polarizabilidad magnética. En esta aproximación, la torca $\vec{\tau}(t) = d\vec{L}/dt$ que actúa en la NP —calculada respecto a la posición de \vec{p} (y de \vec{m})—al tiempo t es $\vec{\tau}(t) = \vec{p}(t) \times \vec{E}^{\text{ext}}(t) + \vec{m}(t) \times \vec{B}^{\text{ext}}(t)$ [39].

Asumiendo una situación análoga a la ilustrada en la Fig. 2.1 para el caso de una NP esférica, es decir, considerando un sistema de coordenadas cartesianas cuyo origen está en el interior de la NP y suponiendo que el electrón viaja en línea recta de $-\infty$ a ∞ con una velocidad constante en la dirección $\hat{\mathbf{e}}_z$, de modo que en $t = 0$ el electrón se localiza en su posición más cercana al origen, el momento angular transferido del electrón a la NP está dado por

$$\Delta \vec{\mathbf{L}} = \int_{-\infty}^{\infty} \vec{\tau}(t) dt = \Delta \vec{\mathbf{L}}_E + \Delta \vec{\mathbf{L}}_M, \quad (3.3)$$

en donde

$$\Delta \vec{\mathbf{L}}_E = \int_{-\infty}^{\infty} \vec{\mathbf{p}}(t) \times \vec{\mathbf{E}}^{ext}(t) dt, \quad (3.4)$$

$$\Delta \vec{\mathbf{L}}_M = \int_{-\infty}^{\infty} \vec{\mathbf{m}}(t) \times \vec{\mathbf{B}}^{ext}(t) dt. \quad (3.5)$$

Los subíndices E y M significan eléctrico y magnético, respectivamente. Considerando las transformadas de Fourier de $\vec{\mathbf{E}}^{ext}(t)$ y $\vec{\mathbf{p}}(t)$ en la Ec. (3.4), se obtiene que

$$\begin{aligned} \Delta \vec{\mathbf{L}}_E &= \int_{-\infty}^{\infty} \left[\int_{-\infty}^{\infty} \vec{\mathbf{p}}(\omega) e^{-i\omega t} \frac{d\omega}{2\pi} \right] \times \left[\int_{-\infty}^{\infty} \vec{\mathbf{E}}^{ext}(\omega) e^{-i\omega' t} \frac{d\omega'}{2\pi} \right] dt \\ &= \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \vec{\mathbf{p}}(\omega) \times \vec{\mathbf{E}}^{ext}(\omega') \frac{d\omega d\omega'}{2\pi} \left[\frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} e^{-i(\omega+\omega')t} dt \right] \\ &= \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \vec{\mathbf{p}}(\omega) \times \vec{\mathbf{E}}^{ext}(\omega') \delta(\omega + \omega') d\omega d\omega' \\ &= \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \vec{\mathbf{p}}(\omega) \times \vec{\mathbf{E}}^{ext}(-\omega) d\omega = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \vec{\mathbf{p}}(\omega) \times \vec{\mathbf{E}}^{ext*}(\omega) d\omega \\ &= \frac{1}{2\pi} \left[\int_0^{\infty} \vec{\mathbf{p}}(\omega) \times \vec{\mathbf{E}}^{ext*}(\omega) d\omega + \int_{-\infty}^0 \vec{\mathbf{p}}(\omega) \times \vec{\mathbf{E}}^{ext*}(\omega) d\omega \right]. \end{aligned} \quad (3.6)$$

Cambiando $\omega \mapsto -\omega$ en la integral de $(-\infty, 0)$ se sigue que

$$\int_{-\infty}^0 \vec{\mathbf{p}}(\omega) \times \vec{\mathbf{E}}^{ext*}(\omega) d\omega = \int_0^{\infty} \vec{\mathbf{p}}(-\omega) \times \vec{\mathbf{E}}^{ext*}(-\omega) d\omega = \int_0^{\infty} \vec{\mathbf{p}}^*(\omega) \times \vec{\mathbf{E}}^{ext}(\omega) d\omega, \quad (3.7)$$

de forma que la Ec. (3.6) se puede reescribir como

$$\begin{aligned} \Delta \vec{\mathbf{L}}_E &= \frac{1}{2\pi} \left[\int_0^{\infty} \vec{\mathbf{p}}(\omega) \times \vec{\mathbf{E}}^{ext*}(\omega) d\omega + \int_0^{\infty} \vec{\mathbf{p}}^*(\omega) \times \vec{\mathbf{E}}^{ext}(\omega) d\omega \right] \\ &= \frac{1}{\pi} \int_0^{\infty} \text{Re} \left\{ \vec{\mathbf{p}}(\omega) \times \vec{\mathbf{E}}^{ext*}(\omega) \right\} d\omega. \end{aligned} \quad (3.8)$$

Así, sustituyendo la Ec. (3.1) en la Ec. (3.8) se obtiene

$$\Delta \vec{\mathbf{L}}_E = \frac{\varepsilon_0}{\pi} \int_0^{\infty} \text{Re} \left\{ [\vec{\alpha}_E(\omega) \cdot \vec{\mathbf{E}}^{ext}(\omega)] \times \vec{\mathbf{E}}^{ext*}(\omega) \right\} d\omega. \quad (3.9)$$

Definiendo la *densidad espectral eléctrica de la transferencia de momento angular* como

$$\vec{\mathcal{L}}^E(\omega) = \frac{\epsilon_0}{\pi} \operatorname{Re} \left\{ \left[\vec{\alpha}_E(\omega) \cdot \vec{E}^{\text{ext}}(\omega) \right] \times \vec{E}^{\text{ext}*}(\omega) \right\}, \quad (3.10)$$

se sigue que

$$\Delta \vec{L}_E = \int_0^\infty \vec{\mathcal{L}}^E(\omega) d\omega. \quad (3.11)$$

De manera completamente análoga, se encuentra que

$$\Delta \vec{L}_M = \int_0^\infty \vec{\mathcal{L}}^M(\omega) d\omega, \quad (3.12)$$

en donde

$$\vec{\mathcal{L}}^M(\omega) = \frac{1}{\mu_0 \pi} \operatorname{Re} \left\{ \left[\vec{\alpha}_M(\omega) \cdot \vec{B}^{\text{ext}}(\omega) \right] \times \vec{B}^{\text{ext}*}(\omega) \right\}, \quad (3.13)$$

representa la *densidad espectral magnética de la transferencia de momento angular*.

Los campos electromagnéticos que aparecen en las Ecs. (3.10) y (3.13) son los campos EMs externos, producidos por el electrón, evaluados en el origen. Por lo tanto, a partir de las Ecs. (2.74) y (2.75) se obtiene que

$$\vec{E}^{\text{ext}}(\omega) = -\frac{1}{4\pi\epsilon_0} \left[\frac{2q_e}{v^2\gamma} \right] \left[|\omega| K_1 \left(\frac{|\omega| b}{\gamma v} \right) \hat{e}_x + \frac{i\omega}{\gamma} K_0 \left(\frac{|\omega| b}{\gamma v} \right) \hat{e}_z \right], \quad (3.14)$$

$$\vec{B}^{\text{ext}}(\omega) = -\frac{1}{4\pi\epsilon_0} \left[\frac{2q_e}{cv\gamma} \right] \left[|\omega| K_1 \left(\frac{|\omega| b}{\gamma v} \right) \hat{e}_y \right]. \quad (3.15)$$

Para simplificar la notación, se definen

$$\varphi = -\frac{1}{4\pi\epsilon_0} \left[\frac{2q_e}{v^2\gamma} \right], \quad \phi = -\frac{1}{4\pi\epsilon_0} \left[\frac{2q_e}{cv\gamma} \right], \quad \kappa_0 = \frac{\omega}{\gamma} K_0 \left(\frac{|\omega| b}{\gamma v} \right), \quad \kappa_1 = |\omega| K_1 \left(\frac{|\omega| b}{\gamma v} \right) \quad (3.16)$$

y se renombran $\hat{e}_x = \hat{e}_1$, $\hat{e}_y = \hat{e}_2$ y $\hat{e}_z = \hat{e}_3$, de manera que las Ecs. (3.14) y (3.15) se reescriben como

$$\vec{E}^{\text{ext}}(\omega) = \varphi [\kappa_1 \hat{e}_1 + i\kappa_0 \hat{e}_3], \quad (3.17)$$

$$\vec{B}^{\text{ext}}(\omega) = \phi \kappa_1 \hat{e}_2. \quad (3.18)$$

Es conveniente denotar por α_{lm}^E a la componente l, m de $\vec{\alpha}_E(\omega)$ y por α_{lm}^M a la componente l, m de $\vec{\alpha}_M(\omega)$. La simetría de los tensores de polarizabilidad [70] implica que $\alpha_{lm}^E = \alpha_{ml}^E$ y $\alpha_{lm}^M = \alpha_{ml}^M$. Entonces,

$$\vec{\alpha}_E(\omega) \cdot \vec{E}^{\text{ext}}(\omega) = \varphi \sum_{l=1}^3 \hat{e}_l [\kappa_1 \alpha_{l1}^E + i\kappa_0 \alpha_{l3}^E] \quad (3.19)$$

y

$$\vec{\alpha}_M(\omega) \cdot \vec{B}^{\text{ext}}(\omega) = \phi \kappa_1 \sum_{l=1}^3 \hat{e}_l \alpha_{l2}^M. \quad (3.20)$$

Definiendo $\mathcal{C}_E = [\vec{\alpha}_E(\omega) \cdot \vec{E}^{\text{ext}}(\omega)] \times \vec{E}^{\text{ext*}}(\omega)$ y haciendo uso de las Ecs. (3.17) y (3.19), se obtiene

$$\begin{aligned}\mathcal{C}_E &= \varphi^2 \begin{vmatrix} \hat{\mathbf{e}}_1 & \hat{\mathbf{e}}_2 & \hat{\mathbf{e}}_3 \\ \kappa_1 \alpha_{11}^E + i \kappa_0 \alpha_{13}^E & \kappa_1 \alpha_{21}^E + i \kappa_0 \alpha_{23}^E & \kappa_1 \alpha_{31}^E + i \kappa_0 \alpha_{33}^E \\ \kappa_1 & 0 & -i \kappa_0 \end{vmatrix} \\ &= \varphi^2 \{ \hat{\mathbf{e}}_1 [\kappa_0^2 \alpha_{23}^E - i \kappa_0 \kappa_1 \alpha_{21}^E] + \hat{\mathbf{e}}_2 [\kappa_1^2 \alpha_{31}^E + i \kappa_0 \kappa_1 \alpha_{33}^E + i \kappa_0 \kappa_1 \alpha_{11}^E - \kappa_0^2 \alpha_{13}^E] + \hat{\mathbf{e}}_3 [-\kappa_1^2 \alpha_{21}^E - i \kappa_0 \kappa_1 \alpha_{23}^E] \} \\ &= \varphi^2 \{ A \hat{\mathbf{e}}_1 + B \hat{\mathbf{e}}_2 + C \hat{\mathbf{e}}_3 \},\end{aligned}\quad (3.21)$$

en donde A , B y C representan los términos entre corchetes que multiplican a los vectores unitarios. Si se expresa $\alpha_{lm}^E = \alpha_{lm}^{E'} + i \alpha_{lm}^{E''}$, de modo que $\alpha_{lm}^{E'}$ es la parte real de α_{lm}^E , denotada por $\text{Re}\{\alpha_{lm}^E\}$, y $\alpha_{lm}^{E''}$ es la parte imaginaria de α_{lm}^E , denotada por $\text{Im}\{\alpha_{lm}^E\}$, se encuentra que

$$\begin{aligned}A &= (\kappa_0^2 \alpha_{23}^{E'} + \kappa_0 \kappa_1 \alpha_{21}^{E''}) + i (\kappa_0^2 \alpha_{23}^{E''} - \kappa_0 \kappa_1 \alpha_{21}^{E'}), \\ B &= (\kappa_1^2 \alpha_{31}^{E'} - \kappa_0 \kappa_1 \alpha_{33}^{E''} - \kappa_0 \kappa_1 \alpha_{11}^{E''} - \kappa_0^2 \alpha_{13}^{E'}) + i (\kappa_1^2 \alpha_{31}^{E''} + \kappa_0 \kappa_1 \alpha_{33}^{E'} - \kappa_0 \kappa_1 \alpha_{11}^{E'} - \kappa_0^2 \alpha_{13}^{E''}), \\ C &= (\kappa_0 \kappa_1 \alpha_{23}^{E''} - \kappa_1^2 \alpha_{21}^{E'}) + i (-\kappa_1^2 \alpha_{21}^{E''} - \kappa_0 \kappa_1 \alpha_{23}^{E'}).\end{aligned}\quad (3.22)$$

Así, la densidad espectral eléctrica de la transferencia de momento angular, Ec. (3.10), para el caso de iluminación con el campo eléctrico de un electrón rápido, puede expresarse como

$$\begin{aligned}\vec{\mathcal{L}}^E(\omega) &= \frac{\varphi^2 \varepsilon_0}{\pi} \left\{ \hat{\mathbf{e}}_1 [\kappa_0^2 \alpha_{23}^{E'} + \kappa_0 \kappa_1 \alpha_{21}^{E''}] + \hat{\mathbf{e}}_2 [\kappa_1^2 \alpha_{31}^{E'} - \kappa_0 \kappa_1 \alpha_{33}^{E''} - \kappa_0 \kappa_1 \alpha_{11}^{E''} - \kappa_0^2 \alpha_{13}^{E'}] + \hat{\mathbf{e}}_3 [\kappa_0 \kappa_1 \alpha_{23}^{E''} - \kappa_1^2 \alpha_{21}^{E'}] \right\} \\ &= \mathcal{L}_1^E(\omega) \hat{\mathbf{e}}_1 + \mathcal{L}_2^E(\omega) \hat{\mathbf{e}}_2 + \mathcal{L}_3^E(\omega) \hat{\mathbf{e}}_3,\end{aligned}\quad (3.23)$$

en donde $\mathcal{L}_j^E(\omega)$ representa la componente de $\vec{\mathcal{L}}^E(\omega)$ a lo largo de la dirección $\hat{\mathbf{e}}_j$. Sustituyendo las Ecs. (3.16) en la Ec. (3.23) y escribiendo nuevamente los índices $\{x, y, z\}$ de las coordenadas cartesianas se encuentra que

$$\begin{aligned}\mathcal{L}_x^E(\omega) &= \left(\frac{1}{4\pi\varepsilon_0} \right)^2 \frac{4q_e^2}{v^4\gamma^2} \frac{\varepsilon_0}{\pi} \left[\frac{\omega^2}{\gamma^2} K_0^2 \left(\frac{|\omega| b}{\gamma v} \right) \text{Re}\{\alpha_{yz}^E(\omega)\} + \right. \\ &\quad \left. \frac{\omega |\omega|}{\gamma} K_0 \left(\frac{|\omega| b}{\gamma v} \right) K_1 \left(\frac{|\omega| b}{\gamma v} \right) \text{Im}\{\alpha_{yx}^E(\omega)\} \right],\end{aligned}\quad (3.24)$$

$$\begin{aligned}\mathcal{L}_y^E(\omega) &= \left(\frac{1}{4\pi\varepsilon_0} \right)^2 \frac{4q_e^2}{v^4\gamma^2} \frac{\varepsilon_0}{\pi} \left[\omega^2 K_1^2 \left(\frac{|\omega| b}{\gamma v} \right) \text{Re}\{\alpha_{zx}^E(\omega)\} - \frac{\omega^2}{\gamma^2} K_0^2 \left(\frac{|\omega| b}{\gamma v} \right) \times \right. \\ &\quad \left. \text{Re}\{\alpha_{xz}^E(\omega)\} - \frac{\omega |\omega|}{\gamma} K_0 \left(\frac{|\omega| b}{\gamma v} \right) K_1 \left(\frac{|\omega| b}{\gamma v} \right) \text{Im}\{\alpha_{xx}^E(\omega) + \alpha_{zz}^E(\omega)\} \right],\end{aligned}\quad (3.25)$$

$$\begin{aligned}\mathcal{L}_z^E(\omega) &= \left(\frac{1}{4\pi\varepsilon_0} \right)^2 \frac{4q_e^2}{v^4\gamma^2} \frac{\varepsilon_0}{\pi} \left[\frac{\omega |\omega|}{\gamma} K_0 \left(\frac{|\omega| b}{\gamma v} \right) K_1 \left(\frac{|\omega| b}{\gamma v} \right) \text{Im}\{\alpha_{yz}^E(\omega)\} - \right. \\ &\quad \left. \omega^2 K_1^2 \left(\frac{|\omega| b}{\gamma v} \right) \text{Re}\{\alpha_{yx}^E(\omega)\} \right].\end{aligned}\quad (3.26)$$

Análogamente, definiendo $\mathcal{C}_M = [\vec{\alpha}_M(\omega) \cdot \vec{B}^{\text{ext}}(\omega)] \times \vec{B}^{\text{ext*}}(\omega)$ y utilizando las Ecs. (3.18) y (3.20) se

obtiene

$$\mathcal{C}_M = \phi^2 \kappa_1^2 \begin{vmatrix} \hat{\mathbf{e}}_1 & \hat{\mathbf{e}}_2 & \hat{\mathbf{e}}_3 \\ \alpha_{12}^M & \alpha_{22}^M & \alpha_{32}^M \\ 0 & 1 & 0 \end{vmatrix} = \phi^2 \kappa_1^2 [-\alpha_{32}^M \hat{\mathbf{e}}_1 + \alpha_{12}^M \hat{\mathbf{e}}_3]. \quad (3.27)$$

Entonces, la densidad espectral magnética de la transferencia de momento angular de un electrón rápido a una NP es

$$\vec{\mathcal{L}}^M(\omega) = \frac{\phi^2 \kappa_1^2}{\mu_0 \pi} \operatorname{Re} \{ [-\alpha_{32}^M \hat{\mathbf{e}}_1 + \alpha_{12}^M \hat{\mathbf{e}}_3] \}, \quad (3.28)$$

la cual, en términos de sus componentes cartesianas es

$$\mathcal{L}_x^M(\omega) = - \left(\frac{1}{4\pi\epsilon_0} \right)^2 \frac{4q_e^2}{c^2 v^2 \gamma^2 \mu_0 \pi} K_1^2 \left(\frac{|\omega| b}{\gamma v} \right) \operatorname{Re} \{ \alpha_{zy}^M(\omega) \} \quad (3.29)$$

$$\mathcal{L}_y^M(\omega) = 0, \quad (3.30)$$

$$\mathcal{L}_z^M(\omega) = \left(\frac{1}{4\pi\epsilon_0} \right)^2 \frac{4q_e^2}{c^2 v^2 \gamma^2 \mu_0 \pi} K_1^2 \left(\frac{|\omega| b}{\gamma v} \right) \operatorname{Re} \{ \alpha_{xy}^M(\omega) \}, \quad (3.31)$$

Es interesante notar que en las Ecs. (3.24)-(3.26) no hay contribución del término $\alpha_{yy}^E(\omega)$ a la transferencia de momento angular (TMA), mientras que la Ec. (3.30) muestra que no hay contribución magnética a la TMA en la dirección $\hat{\mathbf{e}}_y$. Más aún, las Ecs. (3.29)-(3.31) muestran que sólo la parte real de $\alpha_{zy}^M(\omega)$ y $\alpha_{xy}^M(\omega)$ contribuyen a $\vec{\mathcal{L}}^M(\omega)$, por lo cual la TMA magnética es independiente de los mecanismos de absorción de energía EM de la NP.

Las Ecs. (3.24)-(3.26) y (3.29)-(3.31) son las expresiones generales, en el límite de partícula pequeña, para las densidades espectrales eléctricas y magnéticas a la TMA a una NP cualquiera, con forma y respuesta electromagnética arbitraria, en término de sus polarizabilidades. Por lo tanto, es posible calcular la TMA en el LPP para cualquier NP siempre y cuando sus conozcan sus polarizabilidades. Vale la pena mencionar que las polarizabilidades están bien definidas incluso para átomos [72]. En particular, existen cálculos de primeros principios para las polarizabilidades dependientes de la frecuencia [73, 74].

3.2. Nanopartículas pequeñas esféricas con respuesta electromagnética homogénea e isótropa

Cuando la respuesta electromagnética de una NP es isótropa, sus tensores de polarizabilidad son diagonales [70]. Una inspección a las Ecs. (3.24)-(3.26) y (3.29)-(3.31) muestra que el momento angular se transfiere en una única dirección y que no posee ninguna contribución magnética. La dirección de la TMA ($-\hat{\mathbf{e}}_y$ en el sistema de coordenadas mostrado en la Fig. 2.1) está determinada por la geometría del problema: la TMA está en la dirección perpendicular tanto a la trayectoria del electrón como a la línea que une al origen de coordenadas con la posición del electrón en $t = 0$. Explícitamente,

$$\mathcal{L}_y^{\text{iso}}(\omega) = - \left(\frac{1}{4\pi\epsilon_0} \right)^2 \frac{4q_e^2}{v^4 \gamma^3} \frac{\epsilon_0}{\pi} \left[\omega |\omega| K_0 \left(\frac{|\omega| b}{\gamma v} \right) K_1 \left(\frac{|\omega| b}{\gamma v} \right) \operatorname{Im} \{ \alpha_{xx}^E(\omega) + \alpha_{zz}^E(\omega) \} \right]. \quad (3.32)$$

Es interesante notar que $\mathcal{L}_y^{\text{iso}}(\omega)$ es proporcional a la extinción de la NP a lo largo de las direcciones $\hat{\mathbf{e}}_x$ y $\hat{\mathbf{e}}_z$. Así, es conveniente definir lo que en este trabajo se denomina *función del haz de electrones*, \mathcal{E} , como

$$\mathcal{E}(b, v; \omega) = -\left(\frac{1}{4\pi\varepsilon_0}\right)^2 \frac{4q_e^2}{v^4\gamma^3} \frac{\varepsilon_0}{\pi} \left[\omega |\omega| K_0\left(\frac{|\omega| b}{\gamma v}\right) K_1\left(\frac{|\omega| b}{\gamma v}\right) \right], \quad (3.33)$$

de forma que la Ec. (3.32) puede reescribirse como

$$\mathcal{L}_y^{\text{iso}}(\omega) = \mathcal{E}(b, v; \omega) \operatorname{Im} \{ \alpha_{xx}^E(\omega) + \alpha_{zz}^E(\omega) \}. \quad (3.34)$$

La función $\mathcal{E}(b, v; \omega)$ contiene solamente información sobre el electrón (velocidad y parámetro de impacto), mientras que el término restante en el miembro derecho de la Ec.(3.34) contiene la información física de la nanopartícula; específicamente, cómo extingue energía electromagnética. Por lo tanto, para cada frecuencia y, en consecuencia, para cada energía, la transferencia de momento angular está determinada por la extinción de la NP. Esta factorización de la información sobre el electrón y sobre la NP da pie a un enfoque en el que el único cambio al pasar de un material a otro es la manera en que la NP extingue la luz.

Si la respuesta electromagnética de la NP es homogénea además de isótropa, los términos en la diagonal de la polarizabilidad eléctrica son iguales y están dados por una función compleja $\alpha^E(\omega)$, de modo que

$$\mathcal{L}_y^{\text{iso+homo}}(\omega) = 2\mathcal{E}(b, v; \omega) \operatorname{Im} \{ \alpha^E(\omega) \}. \quad (3.35)$$

En particular, la polarizabilidad eléctrica para una esfera con respuesta EM isótropa y homogénea, de cualquier radio, está dada por [75]

$$\alpha^E(\omega) = \left(\frac{6\pi i}{k_0^3}\right) a_1(\omega), \quad (3.36)$$

en donde $k_0 = \omega/c$ es el número de onda en el vacío y $a_1(\omega)$ es el primer coeficiente de Mie, el cual depende del radio de la NP y su función dieléctrica [64]¹. Aunque, en general, para nanopartículas pequeñas es necesario considerar correcciones por tamaño a la función dieléctrica de bullo [68], hemos encontrado que dichas correcciones tienen un efecto despreciable para la TMA, aún para las NPs más pequeñas que se consideran en este trabajo (ver Apéndice C para más detalles). Por lo anterior, en todos los cálculos de este trabajo se utilizan funciones dieléctricas de bullo.

Para partículas pequeñas, la parte imaginaria de la polarizabilidad está relacionada con la sección transversal de extinción, C_{ext} , mediante [64]

$$C_{\text{ext}}(\omega) = k \operatorname{Im} [\alpha^E(\omega)]; \quad (3.37)$$

por lo tanto, al sustituir la Ec. (3.37) en la Ec. (3.35) se obtiene la densidad espectral de la transferencia de momento angular, \mathcal{L} , para nanopartículas pequeñas con una respuesta electromagnética homogénea e isótropa:

$$\mathcal{L}(\omega) = \frac{2}{k} \mathcal{E}(b, v; \omega) C_{\text{ext}}(\omega). \quad (3.38)$$

¹Explícitamente, $a_1(\omega) = it_1^E$, en donde t_1^E corresponde a considerar $\ell = 1$ en la Ec. (B.31).

Es importante mencionar que en la Ref. [10] se reporta una expresión de $\mathcal{L}(\omega)$ para nanopartículas esféricas pequeñas. Sin embargo, dicha expresión predice un comportamiento distinto al de la Ec. (3.38). Un análisis detallado de las discrepancias se presenta en el Apéndice D y se concluye que, bajo las aproximaciones de este trabajo, la Ec. (3.38) es correcta.

Sustituyendo la Ec. (3.38) en la Ec. (3.11) y ésta a su vez en la Ec. (3.3), se encuentra finalmente que la TMA, en el LPP, para nanopartículas pequeñas con respuesta electromagnética homogénea e isótropa es

Transferencia de momento angular de un electrón rápido a una nanopartícula en el límite de partícula pequeña

$$\Delta \vec{\mathbf{L}} = \hat{\mathbf{e}}_y \int_0^\infty \frac{2}{k} \mathcal{E}(b, v; \omega) C_{\text{ext}}(\omega) d\omega. \quad (3.39)$$

Para calcular la TMA a partir de la Ec. (3.39), en este trabajo se ha utilizado la cuadratura de doble exponencial implementada en *Wolfram Mathematica* [76], asegurando la exactitud de sus primeras tres cifras significativas. Los detalles de la cuadratura de doble exponencial se encuentran en el Apéndice A.

3.2.1. Respuesta temporal de nanopartículas pequeñas

Para estudiar el comportamiento temporal de la dinámica angular de una NP pequeña, puede calcularse la torca en función del tiempo que el electrón ejerce sobre la NP. Como se discutió anteriormente, en NPs esféricas con respuestas electromagnéticas homogéneas e isótropas, sólo la parte eléctrica contribuye a la dinámica angular. Por lo tanto, en este caso, se considera únicamente la torca producida por el campo eléctrico del electrón, la cual está dada por [39]

$$\vec{\tau}(t) = \vec{\mathbf{p}}(t) \times \vec{\mathbf{E}}(t), \quad (3.40)$$

donde

$$\vec{\mathbf{E}}(t) = \frac{\gamma q_e}{4\pi\epsilon_0} \frac{b\hat{\mathbf{e}}_x + vt\hat{\mathbf{e}}_z}{[b^2 + (\gamma vt)^2]^{3/2}} \quad (3.41)$$

es el campo eléctrico producido por el electrón rápido en función del tiempo [ver Ec. (2.71)] evaluado en el origen y $\vec{\mathbf{p}}(t)$ es la transformada de Fourier inversa de $\vec{\mathbf{p}}(\omega)$ dado en la Ec. (3.1). Explícitamente,

$$\vec{\mathbf{p}}(t) = \epsilon_0 \int_0^\infty \alpha(t') \vec{\mathbf{E}}(t-t') dt', \quad (3.42)$$

donde

$$\alpha(t') = \int_{-\infty}^{\infty} \alpha_s(\omega) e^{-i\omega t'} \frac{d\omega}{2\pi} \quad (3.43)$$

es la transformada de Fourier inversa de la polarizabilidad eléctrica. Como las NPs son pequeñas, se ha aproximado $\alpha(\omega)$ por la polarizabilidad cuasiestática $\alpha_s(\omega)$, dada en la Ec. (D.8) en el Apéndice D.

Capítulo 4

Resultados y discusión

En los capítulos anteriores se desarrolló la teoría de la transferencia de momento angular (TMA) de un electrón rápido a una nanopartícula (NP) esférica. En particular, en la Ec. (2.70) se presentó una expresión general para la TMA a una NP de cualquier radio, mientras que en la Ec. (3.39) se presentó la expresión de la TMA en el límite de partícula pequeña. Lo anterior permite el estudio de la TMA a nanopartículas esféricas de cualquier tamaño en la nanoscalada (que va de 1 nm a 100 nm [48]). En este capítulo se presentan resultados de la TMA a NPs esféricas de distintos radios, cubriendo la nanoscalada.

Como se señaló en los capítulos anteriores, el momento angular que un electrón del haz de un STEM transfiere a una NP esférica depende, entre otras cosas, de la respuesta electromagnética de la NP, la cual, en nuestro caso, está representada por su función dieléctrica $\varepsilon(\omega)$. Más aún, se ha encontrado que, en el límite de partícula pequeña, la TMA se relaciona directamente con la forma en que la NP extingue la radiación EM [ver Ec. (3.39)].

Dado que los metales son los materiales absorbentes típicos, en este capítulo se presentan resultados sobre la dinámica angular de NPs metálicas debida a su interacción con un electrón del haz de un STEM. Como primer material de estudio, para una interpretación física sencilla, se considera una NP de aluminio (Al) con una $\varepsilon(\omega)$ dada por el modelo de Drude con los siguientes parámetros: $\hbar\omega = 13.142$ eV y $\hbar\Gamma = 0.197$ eV [67]. Como un caso más realista, se estudia una NP de oro (Au) caracterizada por una función analítica $\varepsilon(\omega)$ interpolada y extrapolada de datos experimentales, reportada por Werner et al. en la Ref. [77], la cual es causal [78], es decir, satisface las relaciones de Kramers-Kronig. La causalidad de $\varepsilon(\omega)$ es muy importante para obtener resultados confiables debido a que todas las frecuencias contribuyen a la TMA [ver Ecs. (2.26), (3.11) y (3.12)] [55, 78]. Finalmente, debido a que recientemente se ha reportado su potencial como material plasmónico [79–81] y a que México se encuentra entre los principales productores de este material en el mundo [82], se presentan resultados para una NP hecha de bismuto (Bi), cuya $\varepsilon(\omega)$ causal también fue tomada de la Ref. [77]. En todos los casos, se utilizan funciones dieléctricas de bullo para caracterizar a las NPs ya que, como se discute en el Apéndice C, las correcciones a $\varepsilon(\omega)$ debidas al tamaño de las NPs son despreciables en lo que respecta a la TMA.

Todos los resultados que se presentan en este capítulo tienen un error relativo menor o igual a 10^{-4} , es decir, en todos los resultados se asegura que las primeras tres cifras significativas son correctas. Los detalles de los métodos numéricos utilizados en este trabajo se encuentran en el Apéndice A, mientras que

los detalles específicos de la convergencia numérica de los resultados se pueden consultar en el Apéndice E.

4.1. Respuesta temporal de nanopartículas pequeñas esféricas de oro y de aluminio

El límite de partícula pequeña (LPP) permite el estudio temporal de la dinámica angular que experimenta una NP pequeña en su interacción con un electrón del haz de un STEM mediante las Ecs. (3.40)-(3.43)¹. Con esto, es posible estimar el tiempo de la interacción en el que ocurre la mayor parte de la transferencia de momento angular debido a la torca ejercida sobre la NP.

En esta sección, utilizando el LPP, se estudia el caso de una NP hecha de Al o de Au, con radio $a = 1$ nm, interactuando con un electrón que viaja con un parámetro de impacto $b = 1.5$ nm (ver Fig. 2.1) y una rapidez $v = 0.5c$ equivalente a un haz de STEM de 79 keV.

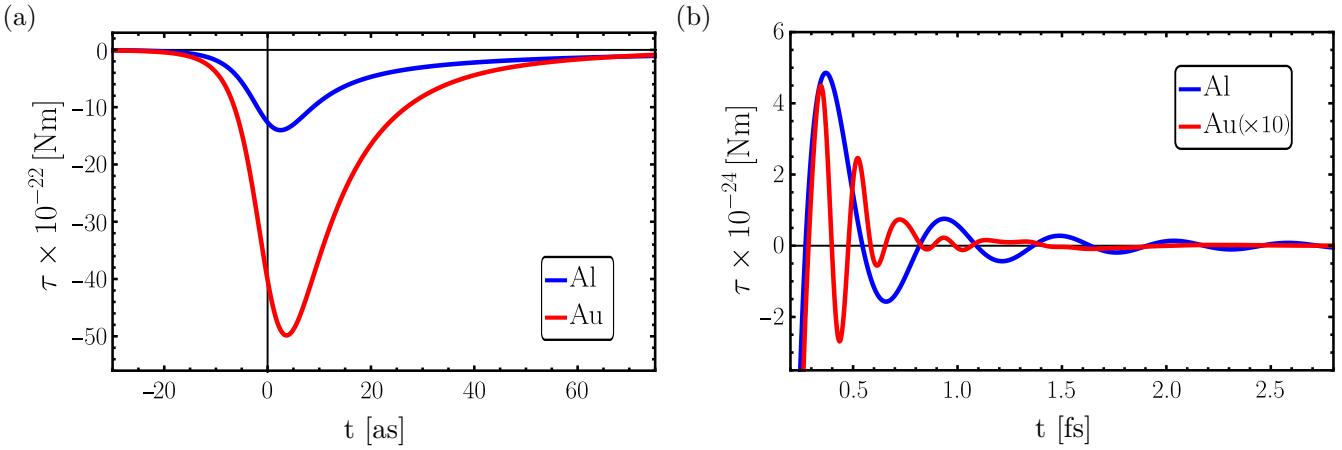


Figura 4.1: Comportamiento temporal de la magnitud de la torca τ sobre nanopartículas pequeñas de aluminio y oro, de radios 1 nm, ejercidas por un electrón con rapidez $v = 0.5c$ (equivalente a 79 keV) y parámetro de impacto $b = 1.5$ nm. (a) Régimen de attosegundos y (b) régimen de femtosegundos de la interacción.

Como se ha reportado anteriormente en las Refs. [34, 47], la mayor parte de la interacción entre las NPs y los electrones de un haz de STEM ocurre en la escala de attosegundos, como se puede apreciar en la Fig. 4.1, donde se muestra la torca en función del tiempo en los regímenes de atto [Fig. 4.1(a)] y femtosegundos [Fig. 4.1(b)], experimentada por la NP de Al (en azul) y de Au (en rojo). En ambos casos, las NPs experimentan una torca negativa durante algunas decenas de attosegundos cerca de $t = 0$ [ver Fig. 4.1(a)] provocando que la NP gire alrededor de la dirección $-\hat{\mathbf{e}}_y$. Esta torca inicial decrece rápidamente dos órdenes de magnitud oscilando en la escala de femtosegundos entre las direcciones $-\hat{\mathbf{e}}_y$ y $\hat{\mathbf{e}}_y$, como se aprecia en la Fig. 4.1(b).

En el caso de la NP de Al, modelada con una función dieléctrica de Drude, la oscilación de la torca es causada por el plasmón dipolar de superficie inducido en la NP. Utilizando la Ec. (D.4), se encuentra

¹El caso de NPs más grandes es computacionalmente mucho más demandante, debido a que es necesario calcular la transformada de Fourier de los campos EM espaciados [Ecs. (2.78) y (2.79)]. Lo anterior hace prácticamente imposible, con nuestras capacidades computacionales actuales, llevar a cabo estudios con NPs de radios mayores a 1 nm. De hecho, hasta donde sabemos, en el caso lineal (fuerzas y transferencia de momento lineal) sólo se han publicado estudios para la dinámica temporal de NPs de 1 nm de radio [34, 35, 47]. Entonces, en este trabajo sólo se analiza la respuesta temporal en el LPP.

que la torca en la NP de Al oscila con una frecuencia angular $\Omega_s = 11,526.8$ THz y, por lo tanto, con un periodo $T_s = 2\pi/\Omega_s = 0.545$ fs [ver la curva azul de la Fig. 4.1(b)].

En contraste, las oscilaciones en la torca que experimenta la NP de Au se deben a la superposición de múltiples resonancias, de modo que no tienen un periodo bien definido. Entonces, a partir de la Fig. (4.1), puede concluirse que la mayor contribución a la TMA proviene del régimen de attosegundos, en donde la naturaleza plasmónica de las nanopartículas no juega un rol primordial, debido a que el comportamiento en la escala de attosegundos se debe principalmente a la respuesta de la NP a frecuencias altas.

Por lo tanto, en el LPP, la descripción temporal de la interacción entre una NP esférica y un electrón rápido, esquematizada en la Fig. 4.2 para una NP de Al, puede resumirse de la siguiente manera:

1. El electrón rápido induce un momento dipolar eléctrico $\vec{p}(t)$ en la NP que alcanza su magnitud máxima cerca de $t = 0$ [Fig. 4.2(a)]. Este \vec{p} inducido gira, siguiendo al electrón debido a la torca $\vec{\tau}$ ejercida en la NP, la cual es perpendicular tanto a \vec{p} como a la velocidad \vec{v} del electrón.
2. El \vec{p} inducido rota, decreciendo en magnitud, provocando que $\vec{\tau}$ decrezca alternando periódicamente su dirección [Figs. 4.2(b) y 4.2(c)]. Esto continua hasta que la NP se despolariza ($\vec{p} = \vec{0}$) debido a sus mecanismos de pérdida de energía.

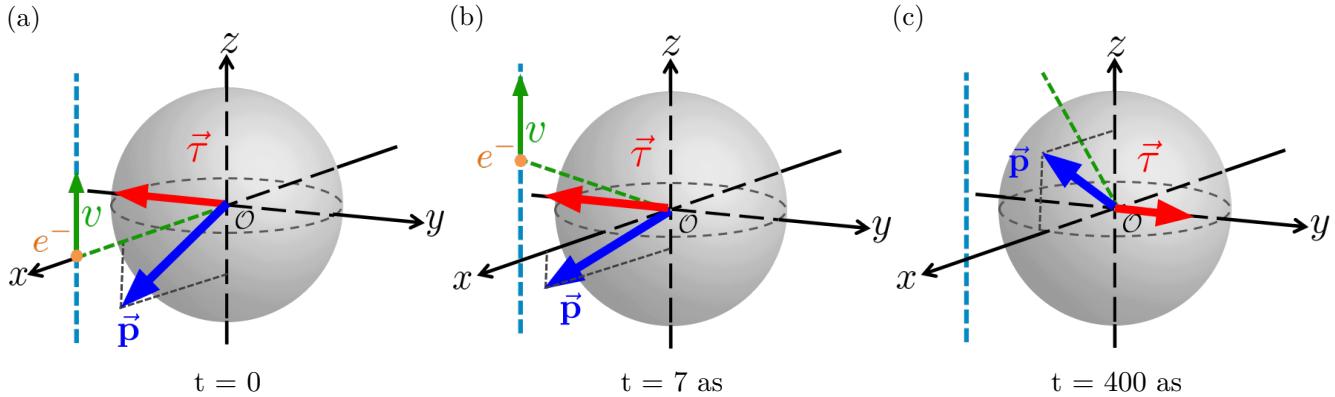


Figura 4.2: Esquematización, en el límite de partícula pequeña (LPP), de la interacción de una NP esférica de aluminio de radio $a = 1$ nm y un electrón e^- viajando con una rapidez $v = 0.5c$ y un parámetro de impacto $b = 1.5$ nm. Se muestra el momento dipolar eléctrico \vec{p} inducido en la NP y la torca $\vec{\tau}$ a tres tiempos distintos: (a) $t = 0$, (b) $t = 7$ as y (c) $t = 400$ as.

En la información suplementaria de nuestro trabajo publicado al respecto (Ref. [71]), se incluyen videos que ilustran la dinámica de las NPs esféricas de Al (videos *Al-Torque-Femto.mp4* y *Al-Torque-Atto.mp4*) y de Au (videos *Au-Torque-Femto.mp4* y *Au-Torque-Atto.mp4*).

4.2. Transferencia de momento angular a nanopartículas esféricas de distintos radios

En la sección anterior se mostró, en el LPP, que la interacción entre el electrón y la NP ocurre principalmente en la escala de attosegundos. Para estudiar el momento angular que el electrón transfiere a la NP en su interacción, es posible utilizar la metodología presentada en los capítulos anteriores. En particular, para partículas pequeñas resulta útil la Ec. (3.39) obtenida en el límite de partícula pequeña, mientras que para partículas más grandes es necesario utilizar la Ec. (2.70).

En esta sección se presentan resultados para la TMA a nanopartículas de aluminio, oro y bismuto de distintos radios.

4.2.1. Transferencia de momento angular en el límite de partícula pequeña: nanopartículas de aluminio, oro y bismuto

Como se discutió en el capítulo anterior, el LPP permite estudiar la TMA a nanopartículas pequeñas. En esta subsección se presentan resultados de la TMA a NPs pequeñas de aluminio, oro y bismuto, utilizando el LPP [Ecs. (3.38) y (3.39)].

En el LPP, dado que la densidad espectral de la TMA es igual al producto de la función del haz de electrones, $\mathcal{E}(\omega)$, y la sección transversal de extinción C_{ext} [ver Ec. (3.38)], la estructura de $\mathcal{L}(\omega)$ para NPs esféricas se hereda de la estructura de C_{ext} , como se puede apreciar en la Fig. 4.3 para el caso de NPs de Al, Au y Bi de 1 nm de radio. Se han incluido líneas verticales punteadas de color verde que indican la posición de las resonancias de C_{ext} , las cuales coinciden con los máximos de $\mathcal{L}(\omega)$ tanto para la NP de aluminio [Fig. 4.3(a)] como para la de oro [Fig. 4.3(b)] y la de bismuto [Fig. 4.3(c)]. En el caso de la NP de Al, la única resonancia se debe a su respuesta tipo Drude y se ubica en $\hbar\omega = 7.59$ eV que corresponde a la energía de su resonancia dipolar $\hbar\omega_s = \hbar\omega_p/\sqrt{3}$ [68]. Para las NPs de Au y Bi, la función dieléctrica consiste en una superposición de un término tipo Drude y ocho lorentzianas (los cuales se ajustan a datos experimentales [77]) que representan distintas transiciones electrónicas, dotando a C_{ext} de una estructura más rica que da forma a la densidad espectral [ver Figs. 4.3(b) y 4.3(c)].

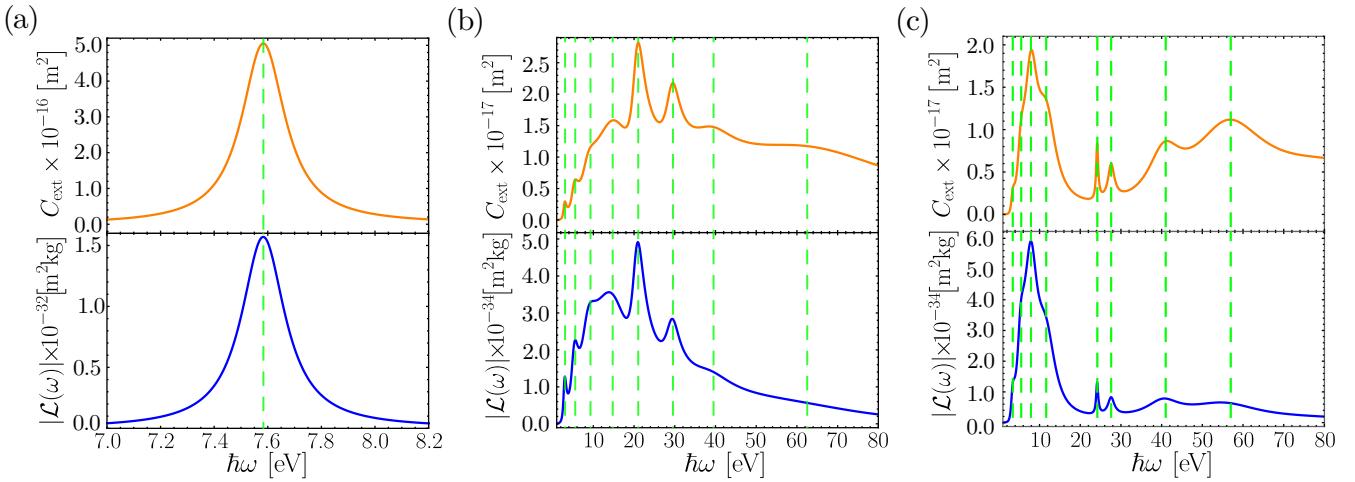


Figura 4.3: Sección transversal de extinción (renglón superior) C_{ext} y magnitud de $\mathcal{L}(\omega)$ (renglón inferior) para (a) una nanopartícula de aluminio modelada con una función dieléctrica tipo Drude [67], para (b) una nanopartícula de oro y (c) una de bismuto, ambas con una función dieléctrica experimental tomada de la Ref. [77]. En todos los casos, el radio de la nanopartícula es $a = 1$ nm, la rapidez del electrón $v = 0.5c$ y el parámetro de impacto $b = 1.5$ nm (ver Fig. 2.1). Las líneas verdes discontinuas verticales indican la posición de los máximos de C_{ext} , los cuales coinciden con los de $\mathcal{L}(\omega)$.

El momento angular transferido del electrón rápido a la NP depende de las características del haz de electrones: la distancia del haz a la NP (parámetro de impacto) y la velocidad del electrón. La Fig. 4.4 muestra la densidad espectral de la TMA para el caso de una NP esférica de radio $a = 1$ nm, hecha de Al [Fig. 4.4 (a) y 4.4 (b)], de Au [Fig. 4.4(c) y 4.4(d)] y de Bi [Fig. 4.4(e) y 4.4(f)]. Las Figs. 4.4(a), 4.4(c) y 4.4(e) muestran $\mathcal{L}(\omega)$ para diferentes parámetros de impacto b con una rapidez del electrón fija en $0.5c$,

mientras que las Figs. 4.4(b), 4.4(d) y 4.4(f) muestran $\mathcal{L}(\omega)$ para diferentes valores de la rapidez $\beta = v/c$ del electrón con $b = 1.5 \text{ nm}$ fijo.

Conforme la trayectoria del electrón se aleja de la NP, la densidad espectral disminuye [ver Figs. 4.4(a), 4.4(c) y 4.4(e)] debido a que el campo eléctrico es menos intenso producido por el electrón que excita la NP. También se observa un aumento en la contribución espectral cuando la velocidad del electrón disminuye [ver Figs. 4.4(b), 4.4(d) y 4.4(f)], debido a que el tiempo de interacción entre el electrón y la NP es más largo.

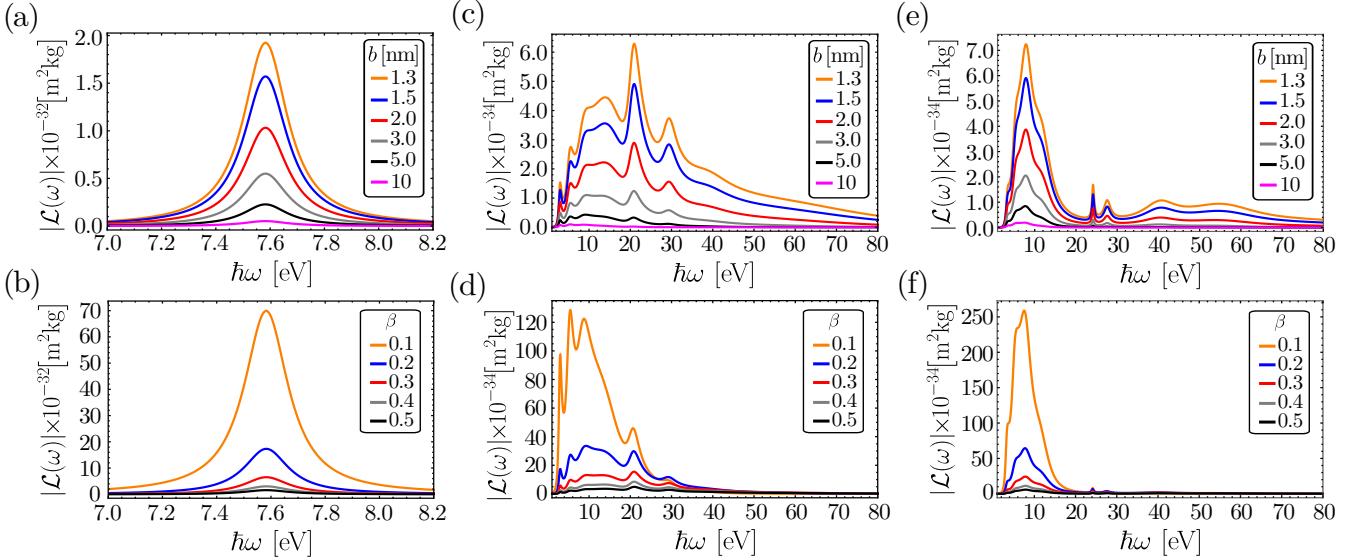


Figura 4.4: Magnitud de $\mathcal{L}(\omega)$ para nanopartículas de aluminio, oro y bismuto de radios 1 nm. Para el caso de aluminio, se muestra $|\mathcal{L}(\omega)|$ para (a) distintos parámetros de impacto b con una rapidez del electrón fija $\beta = v/c = 0.5c$ y (b) para distintos valores de β para un parámetro de impacto fijo $b = 1.5 \text{ nm}$. (c) y (d) corresponden a (a) y (b), respectivamente, para el caso de la nanopartícula de oro, mientras que (e) y (f) son las correspondientes para bismuto.

En la Fig. 4.5 se presenta la magnitud de la TMA, ΔL , calculada en el LPP a partir de la Ec. (3.39), en función del parámetro de impacto b y la rapidez del electrón $\beta = v/c$ (o bien, de la energía del haz de electrones) para NPs de Al (renglón superior), Au (renglón central) y Bi (renglón inferior) de diferentes radios (1 nm, 5 nm y 10 nm). Algo interesante es que, en todos los casos, el máximo de ΔL es del orden de centésimas de \hbar . Más aún, dado un radio fijo para la NP, la forma de ΔL es similar para los tres materiales. Como es de esperarse, conforme b aumenta, ΔL disminuye debido a que la NP experimenta un campo eléctrico menos intenso cuando la trayectoria del electrón se encuentra más lejos.

La TMA se manifiesta en que las NPs rotan en presencia de un haz de electrones. Los cálculos de este trabajo, en los que se consideran NPs sin fricción, permiten establecer una cota superior para la frecuencia angular que experimenta una NP en su interacción con un haz de electrones mediante la fórmula $L = I\Omega$ [83], en donde I representa el momento de inercia de la NP esférica. Por ejemplo, en la Fig. 4.6 se muestran los resultados numéricos, en el LPP, para la frecuencia angular Ω de una NP de Au de radio 5 nm².

Una característica notable que se puede apreciar en las Figs. 4.5 y 4.6 es la presencia de un máximo de ΔL , y por lo tanto de Ω , en función de β (y no así en función de b). Dicho máximo se corre a energías

²Se ha utilizado el hecho de que el momento de inercia de una esfera de masa M y radio a es $I = (2/5)a^2M$ [83]. La masa de la NP de oro se calculó a partir de su densidad de masa $\rho = 19.32 \text{ g/cm}^3$ [84].

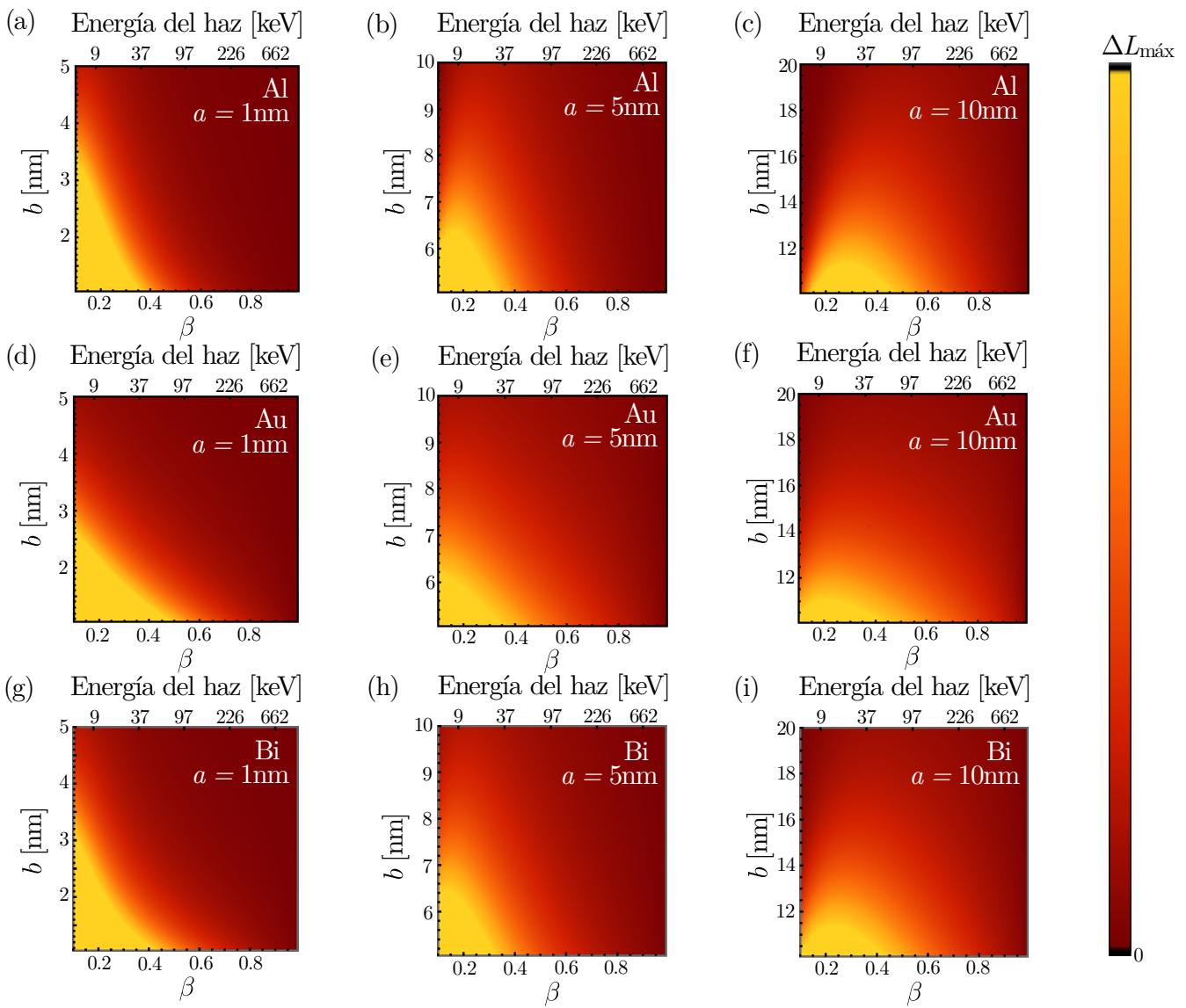


Figura 4.5: Transferencia de momento angular, ΔL , en el límite de partícula pequeña, en función del parámetro de impacto b y la rapidez del electrón β (o equivalentemente la energía del haz de electrones) para una nanopartícula esférica de aluminio (Drude) de radio (a) $a = 1\text{ nm}$, con un ΔL máximo ($\Delta L_{\text{máx}}$) de $3.89 \times 10^{-2}\hbar$, (b) $a = 5\text{ nm}$, con $\Delta L_{\text{máx}} = 4.42 \times 10^{-2}\hbar$, (c) $a = 10\text{ nm}$, con $\Delta L_{\text{máx}} = 2.32 \times 10^{-2}\hbar$; para una nanopartícula esférica de oro de radio (d) $a = 1\text{ nm}$, con $\Delta L_{\text{máx}} = 3.95 \times 10^{-2}\hbar$, (e) $a = 5\text{ nm}$, con $\Delta L_{\text{máx}} = 2.81 \times 10^{-2}\hbar$ y (f) $a = 10\text{ nm}$, con $\Delta L_{\text{máx}} = 1.54 \times 10^{-2}\hbar$; y para una nanopartícula esférica de bismuto de radio (g) $a = 1\text{ nm}$, con $\Delta L_{\text{máx}} = 3.51 \times 10^{-2}\hbar$, (h) $a = 5\text{ nm}$, con $\Delta L_{\text{máx}} = 4.05 \times 10^{-2}\hbar$ y (i) $a = 10\text{ nm}$, con $\Delta L_{\text{máx}} = 2.15 \times 10^{-2}\hbar$.

altas conforme el radio de la NP aumenta.

Para explicar el origen del máximo de ΔL en función de β es conveniente aprovechar el contenido de la sección anterior. Cuando la velocidad del electrón es muy baja, el momento dipolar eléctrico $\vec{p}(t)$ apunta hacia la posición en la que se encuentra el electrón al tiempo t [47]. Sin embargo, conforme la velocidad del electrón aumenta, $\vec{p}(t)$ se retraza respecto a la posición del electrón debido a los efectos de retardo [47], como se ha ilustrado en la Fig. 4.2.

En la Fig. 4.7 se presentan las polarizabilidades de NPs de 1 nm de radio, hechas de aluminio (línea roja), de oro (línea azul) y de bismuto (línea verde). Al inicio de la interacción, la polarizabilidad y, en

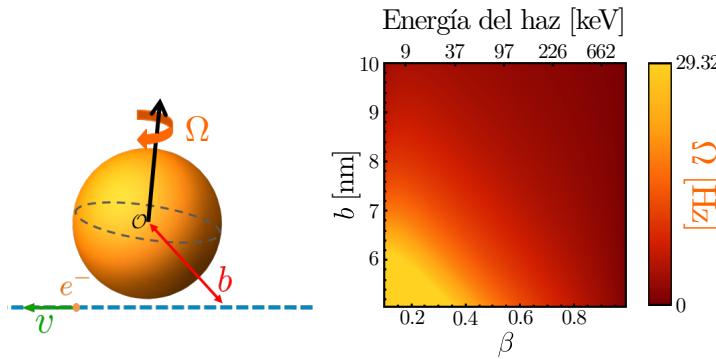


Figura 4.6: Frecuencia angular, Ω , adquirida por una NP de oro de radio $a = 5$ nm, al interactuar con un electrón rápido, en función del parámetro de impacto b , la rapidez del electrón β y la energía del haz de electrones.

consecuencia, el momento dipolar incrementan hasta alcanzar un máximo.

En un extremo, para velocidades del electrón muy bajas, el campo eléctrico $\vec{E}(t)$ producido por el electrón [ver Ec. (3.41)] se asemeja al campo de Coulomb y como $\vec{p}(t)$ apunta hacia la posición del electrón, $\vec{E}(t)$ y $\vec{p}(t)$ son prácticamente paralelos, de modo que la torca [ver Ec. (3.40)] y la TMA son muy pequeñas.

En el otro extremo, cuando β es muy grande ($\sim c$), el campo eléctrico se comprime en la dirección del movimiento del electrón de modo que su gradiente es importante [85] y la interacción del campo eléctrico con la NP dura muy poco tiempo. Entonces, aunque en $t \approx 0$ el campo $\vec{E}(t)$ es intenso en la posición de la NP, $\vec{p}(t)$ es pequeño debido a que la polarizabilidad eléctrica tiende a cero conforme t tiende a cero (ver Fig. 4.7). Así, también en el caso de β muy cercana a c , la torca y la TMA son muy pequeñas.

Sin embargo, para velocidades intermedias, la torca puede tener valores considerables en la escala de attosegundos (ver Fig. 4.1), por lo que la TMA puede tomar valores grandes en comparación con los casos $\beta \approx 0$ y $\beta \sim c$. Lo anterior permite concluir que, en el límite de partícula pequeña, ΔL debe alcanzar un máximo en $0 < \beta < c$.

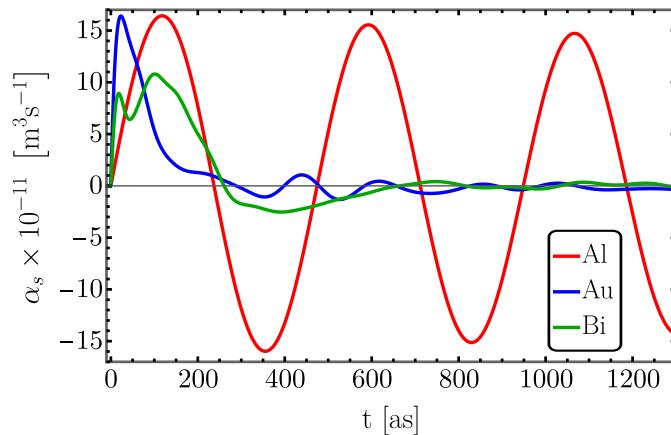


Figura 4.7: Polarizabilidad cuasiestática en función del tiempo de una NP de Al (línea roja), una NP de Au (línea azul) y una NP de Bi (línea verde), todas de 1 nm de radio.

De forma complementaria, a partir de la Ec. (3.39) se sigue que, como la TMA se relaciona directamente con los mecanismos de extinción de las NPs, también debe hacerlo el máximo de ΔL . La conexión está en el hecho de que en NPs pequeñas, la extinción se debe prácticamente a la absorción, mientras que conforme

aumenta el radio, el esparcimiento se vuelve importante [64]. En las NPs más pequeñas, la radiación EM prácticamente sólo se absorbe, es decir, se absorbe su energía, su momento lineal y su momento angular. Conforme el radio de las NPs incrementa, parte de la radiación se absorbe y otra parte se esparce, por lo que el máximo de ΔL se debe a un compromiso entre la absorción y el esparcimiento del momento angular de la radiación EM.

Conforme el radio de la NP aumenta, además de que el esparcimiento se vuelve importante, también se vuelven importantes las contribuciones multipolares más altas y el LPP deja de ser válido. En ese caso, del mismo modo que el momento dipolar eléctrico, los momentos multipolares electromagnéticos contribuyen a la TMA, como puede apreciarse en las Ecs. (2.70), (2.78) y (2.79)³. Como la dinámica de cada multipolo no es necesariamente igual que la del dipolo eléctrico, es posible que en algunos casos el máximo en ΔL desaparezca.

Para ilustrar lo anterior, en la Fig. 4.8 se presenta la TMA para distintas contribuciones multipolares de una NP de Al de 5 nm de radio⁴. En todos los casos, las líneas continuas sólo sirven de guía al ojo. El parámetro ℓ_{\max} corresponde al valor máximo de ℓ considerado en las Ecs. (2.78) y (2.79)⁵.

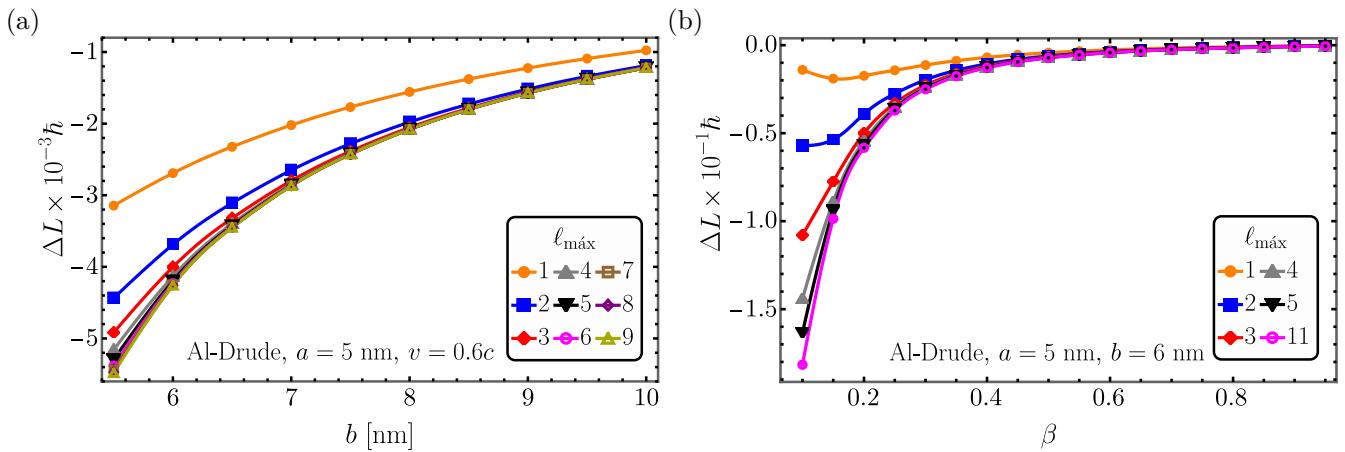


Figura 4.8: Contribuciones multipolares a la transferencia de momento angular a una nanopartícula de aluminio de 5 nm de radio. (a) ΔL en función del parámetro de impacto para $v = 0.6c$ fija y (b) ΔL en función de β para $b = 6$ nm fijo.

Una característica que se aprecia en la Fig. 4.8 es que cada multipolo contribuye a aumentar la magnitud de la TMA. En la Fig. 4.8(a), que muestra la TMA en función de b para una rapidez del electrón $v = 0.6c$ fija (equivalente a ≈ 128 keV), se puede observar que, para todos los multipoles, la TMA disminuye conforme aumenta el parámetro de impacto. Ahora bien, el valor exacto de la TMA corresponde al límite en que $\ell_{\max} \rightarrow \infty$, de modo que la Fig. 4.8 representa también la convergencia de la TMA en términos del número de multipoles considerados. Entonces, como se aprecia en las Figs. 4.8(a) y (b), la convergencia es monótona.

Algo interesante que se puede notar en la Fig. 4.8(b), que muestra la TMA en función de la rapidez del electrón para $b = 6$ nm fijo, es que las curvas de $\ell_{\max} = 1$ y $\ell_{\max} = 2$ presentan un pico, el cual es

³En el resto del trabajo, cuando se mencionan las contribuciones multipolares se hace referencia a las expresiones para los campos EMs esparcidos de las Ecs. (2.78) y (2.79). El campo EM externo se considera dado por las Ecs. (2.74) y (2.75) (no multipolares).

⁴El parámetro de impacto b se mide respecto al centro de la NP (ver Fig. 2.1), por lo que siempre es mayor al radio a de la NP. La distancia entre la superficie de la NP y la trayectoria del electrón es $b - a$.

⁵Nótese que en la Fig. 4.8(a) ℓ_{\max} va de 1 a 9 mientras que en la Fig. 4.8(b) ℓ_{\max} va de 1 a 5 y luego salta hasta 11.

vestigio del máximo de ΔL presente en el límite de partícula pequeña. Este pico desaparece conforme aumenta ℓ_{\max} , es decir, conforme se consideran más multipolos para el cálculo de la TMA. Más aún, salvo por el pico, se observa que la TMA disminuye conforme aumenta la rapidez del electrón.

Como se aprecia en la Fig. 4.8, los puntos más difíciles de converger son aquellos con los valores más pequeños de b y v considerados. Entonces, para asegurar la convergencia de un cálculo de la TMA en función de b es suficiente con estudiar la convergencia en el punto con el menor b considerado y utilizar el mismo valor de ℓ_{\max} con el que convergió ese punto para el resto. Análogamente, para la TMA en función de v es suficiente con asegurar la convergencia de la menor v estudiada.

4.2.2. Validez del límite de partícula pequeña para el cálculo de la TMA: nanopartículas de 1 nm de radio de aluminio, oro y bismuto

Como se discute en la Ref. [47], el límite de partícula pequeña en la interacción de un electrón rápido, viajando con un parámetro de impacto b respecto a una NP de radio a , corresponde a considerar $\ell_{\max} = 1$ y $b \gg a$. En particular, en la Ref. [47] se encontró que $b/a > 3$ es suficiente para el caso de la transferencia de momento lineal para NPs de Al y Au con $a = 1$ nm. Es necesario establecer un criterio análogo para la validez del LPP en los cálculos de TMA.

Para construir dicho criterio, en la Fig. 4.9 se compara la TMA a NPs de Al, Au y Bi de 1 nm de radio calculada con el LPP [Ec. (3.39)] con la que se obtiene a partir de la Ec. (2.70), válida para NPs de cualquier radio.

En la columna izquierda de la Fig. 4.9 se muestra la TMA en función del parámetro de impacto para la NP de Al [Fig. 4.9(a)], para la NP de Au [Fig. 4.9(b)] y para la NP de Bi [Fig. 4.9(c)]. Con círculos negros, se muestra la TMA convergida (con tres cifras significativas), la cual se alcanza con $\ell_{\max} = 6$ para los tres materiales⁶. La TMA calculada con $\ell_{\max} = 1$ se muestra con cuadrados verdes y la TMA calculada con el LPP se muestra con diamantes rojos. En todos los casos, la línea continua es únicamente una guía al ojo.

En las gráficas de la columna izquierda de la Fig. 4.9 se observa que, para los parámetros estudiados, el LPP coincide con el cálculo de $\ell_{\max} = 1$. Además, se observa que las tres curvas coinciden cuando $b/a \geq 4$. Es decir, el LPP es válido para calcular la TMA cuando $b/a \geq 4$, al menos para las NPs estudiadas.

Lo anterior se puede constatar en la columna derecha de la Fig. 4.9, en donde se muestran las gráficas de la TMA (utilizando el mismo código de colores y símbolos que en la columna izquierda), en función de la rapidez del electrón, con $b/a = 4$ para las NPs de $a = 1$ nm de Al [Fig. 4.9(d)], Au [Fig. 4.9(e)] y Bi [Fig. 4.9(f)]. Es relevante notar que, nuevamente, la TMA decae rápidamente conforme b y β aumentan.

La pequeña (pero apreciable) diferencia entre el LPP y los cálculos convergidos con $\ell_{\max} = 6$ en las Figs. 4.9(d)-(f) para valores pequeños de la rapidez del electrón ($\beta < 0.4$ ⁷) se debe al comportamiento que produce el pico en el LPP discutido en la sección anterior. Como se mostró en la Fig. 4.8, dicho pico desaparece conforme aumenta el número de multipolos considerados. Por lo tanto, para las NPs estudiadas, el criterio de validez del LPP se puede enunciar de la siguiente manera:

⁶En el Apéndice E se presentan las curvas de convergencia para éste y todos los cálculos de TMA de este trabajo. En particular, la columna izquierda de la Fig. E.1 corresponde a la convergencia de los cálculos de la Fig. 4.9.

⁷O equivalentemente, una energía del haz mayor a 47 keV.

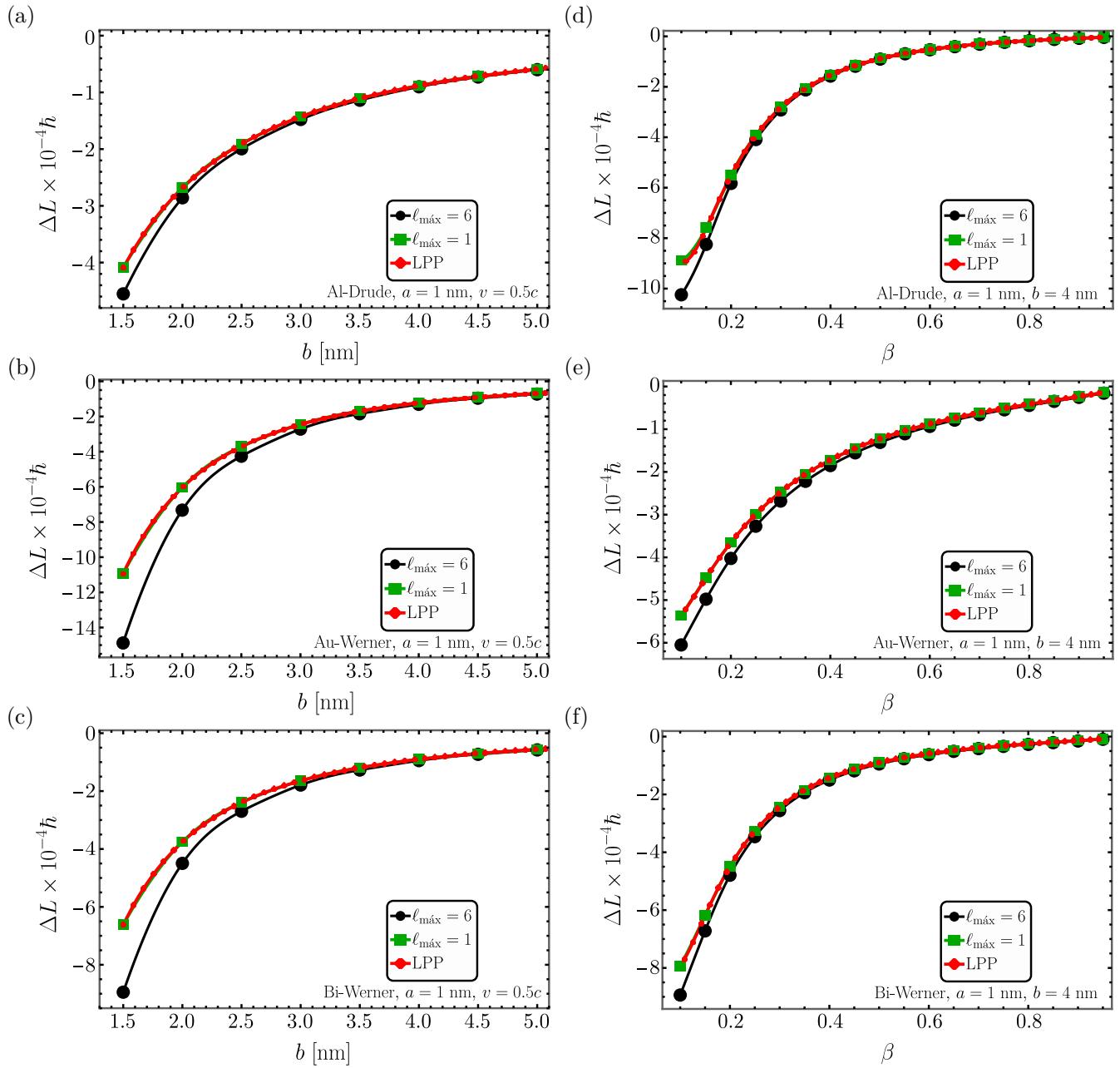


Figura 4.9: Comparación del valor convergido de la TMA (en círculos negros) a NPs de Al, Au y Bi de 1 nm de radio (obtenida con $\ell_{\max} = 6$) con el valor que se obtiene con el LPP (diamantes rojos) y con $\ell_{\max} = 1$ (en cuadrados verdes). Columna izquierda: TMA en función del parámetro de impacto a $v = 0.5c$ fija para una NP de (a) aluminio, (b) oro y (c) bismuto. Columna derecha: TMA en función de la rapidez del electrón a $b = 4$ nm fijo para una NP de (d) aluminio, (e) oro y (f) bismuto. En todos los casos, las líneas continuas son únicamente una guía al ojo.

Validez del LPP para el cálculo de la TMA a NPs de Al, Au y Bi de 1 nm de radio

El límite de partícula pequeña es una buena aproximación para el cálculo de la transferencia de momento angular a nanopartículas de aluminio, oro y bismuto de 1 nm cuando $b/a \geq 4$ y $v/c \geq 0.4$.

Dado que los valores más importantes de la TMA ocurren para parámetros de impacto pequeños, en lo subsecuente se estudia la TMA a NPs de radios a mayores a 1 nm, para las cuales el electrón viaja en

trayectorias con $b \approx a^8$. Por lo tanto, debido a los resultados de esta sección, el resto de cálculos de la TMA en este capítulo se llevan a cabo utilizando la Ec. (2.70), es decir, ya no se utiliza el LPP.

4.2.3. Transferencia de momento angular a nanopartículas de aluminio, oro y bismuto de 5 nm de radio

En general, tanto en los TEMs como en los STEMs, las energías típicas de los haces de electrones que se utilizan se encuentran entre 100 keV ($v \approx 0.548c$) y 1 MeV ($v \approx 0.941c$) [86]. Por lo anterior, en lo subsecuente se presentarán resultados únicamente para valores de la rapidez del electrón entre $0.5c$ y $0.95c$.

En esta subsección, se estudia la TMA a NPs de 5 nm de radio hechas de Al, Au y Bi. En los resultados que se presentan a continuación (y en el resto de este capítulo) se indicará en el interior de cada gráfica el valor de ℓ_{\max} utilizado para garantizar la convergencia de las primeras tres cifras significativas de la TMA. Los detalles de la convergencia se pueden consultar en el Apéndice E. En todos los casos, los valores calculados de la TMA se han indicado con símbolos (círculos, rectángulos y diamantes), los cuales se han unido con líneas que únicamente son una guía al ojo.

En la Fig. 4.10 se muestra la TMA, calculada a partir de la Ec. (2.70), de un electrón rápido a NPs de aluminio (primer renglón), oro (segundo renglón) y bismuto (tercer renglón), de 5 nm de radio. En todos los casos, se presenta la contribución eléctrica [Ec. (2.52)] con círculos negros, la contribución magnética [Ec. (2.53)] con cuadrados azules y la suma, es decir, la TMA total [Ec. (2.70)], con diamantes naranjas.

Para la NP de Al es suficiente calcular la TMA con $\ell_{\max} = 10$ para asegurar las primeras tres cifras significativas, mientras que para las NPs de Au y Bi es necesario considerar $\ell_{\max} = 12$. La diferencia se debe a que la función dieléctrica utilizada para el aluminio (modelo de Drude) tiene menos estructura que las utilizadas para el oro y el bismuto (suma de lorentzianas). Los detalles de la convergencia se encuentran en la columna derecha de la Fig. E.1 del Apéndice E⁹.

Comparando la Fig. 4.10 con los resultados para NPs de 1 nm de radio (Fig. 4.9), se observa que la TMA para las NPs de 5 nm de radio es un orden de magnitud mayor ($10^{-3}\hbar$) que para las de 1 nm de radio ($10^{-4}\hbar$). Una tendencia general que se aprecia en la Fig. 4.10 es que la contribución eléctrica domina a la magnética. Sin embargo, a velocidades altas, la contribución eléctrica y magnética son comparables, como se puede apreciar a $v = 0.95c$ (o equivalentemente a 1,126 keV) en la columna derecha de la Fig. 4.10. Más aún, en la columna izquierda de la Fig. 4.10 se aprecia que la contribución magnética aumenta ligeramente conforme $b \rightarrow a$, aunque se mantiene en un orden de magnitud menor que la contribución eléctrica. Como es de esperarse (debido a los resultados del LPP¹⁰), $\Delta L \rightarrow \Delta L_E$ conforme b aumenta. Es decir, conforme la trayectoria del electrón se aleja de la nanopartícula, la contribución magnética a la TMA desaparece.

Algo interesante que comparten las Figs. 4.10 (para NPs de 5 nm de radio) y 4.9 (para NPs de 1 nm de radio) es que, aunque la TMA es del mismo orden de magnitud (para un radio dado) en los tres materiales considerados, $\Delta L^{Al} < \Delta L^{Bi} < \Delta L^{Au}$ tanto para el caso de 1 nm como para el de 5 nm¹¹.

⁸En general, se considerarán valores del parámetro de impacto $b \geq a + 0.5$ nm.

⁹Nótese además que la Fig. 4.8 de este capítulo muestra curvas de convergencia para el caso de la NP de Al de 5 nm de radio.

¹⁰Véase el contenido del primer párrafo de la sección 3.2.

¹¹ ΔL^X denota a la TMA a una NP del material X.

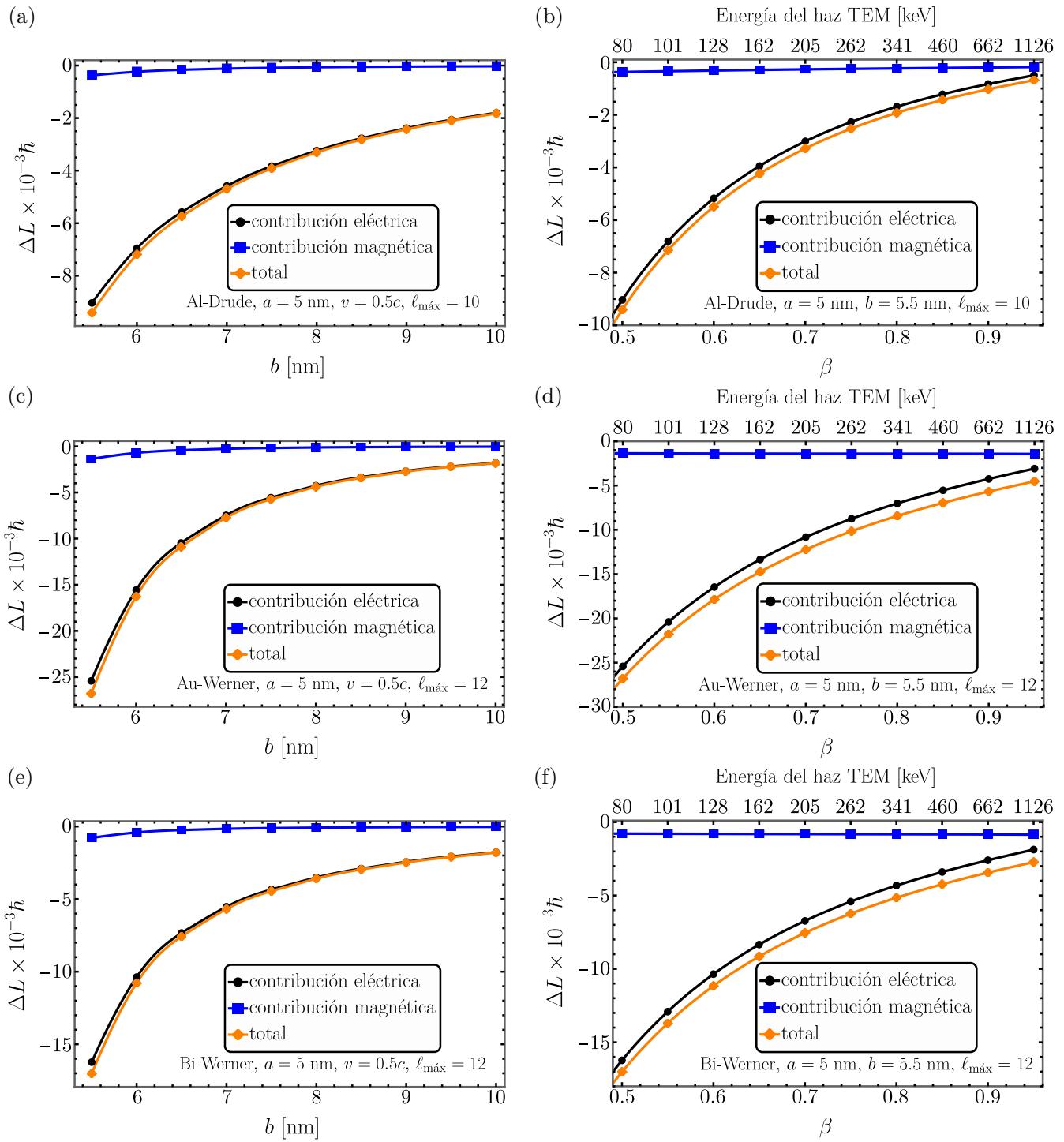


Figura 4.10: Transferencia de momento angular de un electrón rápido a NPs de aluminio, oro y bismuto de 5 nm de radio. TMA a la NP de Al con $\ell_{\max} = 10$ (a) en función de la rapidez $\beta = v/c$ del electrón para un parámetro de impacto $b = 5.5$ fijo y (b) en función de b para $v = 0.5c$ fija. TMA a la NP de Au con $\ell_{\max} = 12$ (c) en función de la rapidez $\beta = v/c$ del electrón para un parámetro de impacto $b = 5.5$ fijo y (d) en función de b para $v = 0.5c$ fija. TMA a la NP de Bi con $\ell_{\max} = 12$ (e) en función de la rapidez $\beta = v/c$ del electrón para un parámetro de impacto $b = 5.5$ fijo y (f) en función de b para $v = 0.5c$ fija.

En la siguiente subsección se continúa con el estudio de la TMA para NPs de radios mayores a 5 nm, cubriendo la nanoescala.

4.2.4. Transferencia de momento angular a nanopartículas grandes: el caso del aluminio tipo Drude

Como la nanoescala comprende longitudes entre 1 nm y 100 nm [48], las nanopartículas esféricas más grandes son aquellas con un radio $a = 50$ nm. En el pasado, en los estudios de transferencia de momento lineal en pinzas electrónicas [10, 15, 19, 25, 29–36], no se ha explorado el caso de nanopartículas tan grandes debido, principalmente, a las limitaciones computacionales de los tiempos en los que se realizó cada trabajo. Sin embargo, con las capacidades computacionales actuales, hoy en día es posible explorar la TMA a algunas NPs grandes, aunque no sin un esfuerzo computacional importante.

En particular, con la metodología numérica desarrollada en este trabajo y los recursos computacionales disponibles (ver Apéndice F), es posible calcular la TMA a NPs de Al (tipo Drude) de cualquier radio entre 1 nm y 50 nm. Sin embargo, por ahora el estudio de la TMA a NPs con respuestas electromagnéticas más realistas, como el oro y el bismuto, excede nuestras capacidades de cómputo¹². Por lo tanto, en esta subsección se presentan resultados de la TMA a NPs únicamente de aluminio de 10 nm, 20 nm y 50 nm de radio, cubriendo la nanoescala.

En la Fig. 4.11 se muestran los resultados del cálculo de la TMA en función del parámetro de impacto (columna izquierda) y de la rapidez del electrón (columna derecha) para NPs de aluminio de 10 nm de radio (primer renglón), para las cuales se alcanzó la convergencia con $\ell_{\max} = 10$; para NPs de 20 nm de radio, para las cuales es suficiente $\ell_{\max} = 11$ (segundo renglón) y para NPs de 50 nm de radio (tercer renglón) para las que se necesitó $\ell_{\max} = 13$. En la Fig. 4.11 se ha utilizado el mismo formato de la Fig. 4.10 (para NPs de 5 nm de radio), es decir, la contribución eléctrica a la TMA se grafica con círculos negros, la magnética con cuadrados azules y la total en diamantes naranjas. Los detalles de las convergencias numéricas se encuentran en el Apéndice E [ver Fig. E.2].

Es interesante notar que $\ell_{\max} = 10$ es suficiente para la convergencia de la TMA tanto para las NPs de aluminio de radio 5 nm [ver Figs. 4.10(a), 4.10(b) y E.1(b)] como para las de 10 nm del mismo material [ver Figs. 4.11(a), 4.11(b) y E.2(a)]. Para la NP de Al de 20 nm [ver Figs. 4.11(c), 4.11(d) y E.2(b)] es suficiente $\ell_{\max} = 11$ mientras que, en contraste, para las NPs de 5 nm de oro y bismuto fue necesario utilizar $\ell_{\max} = 12$ [ver Figs. 4.10(c)-(f), E.1(d) y E.1(f)]. De hecho, la demanda computacional para el cálculo de la TMA a NPs de Al de 50 nm de radio con $\ell_{\max} = 13$ es comparable a la de las partículas de 5 nm de oro y bismuto¹³.

En la Fig. 4.11 nuevamente se aprecia que la TMA aumenta conforme aumenta el radio de las NPs. En particular, tomando en cuenta los resultados de las subsecciones anteriores, se ha encontrado que la TMA tiene un orden de magnitud que va de $10^{-4}\hbar$ para NPs de Al, Au y Bi de 1 nm de radio (ver Fig. 4.9) hasta $10^{-1}\hbar$ para NPs de Al de 50 nm de radio [ver Figs. 4.11(e) y (f)].

Excepto por el orden de magnitud, en la Fig. 4.11 se puede observar que las características de la TMA a NPs grandes son las mismas que para el resto de las NPs estudiadas [ver Figs. 4.10 y 4.9]: ΔL decrece conforme v y b aumentan, la contribución eléctrica domina a la magnética aunque se vuelven comparables en velocidades muy altas ($\beta > 0.9$), la contribución magnética aumenta ligeramente conforme

¹²Con la información del Apéndice E (sobre la convergencia numérica de la TMA) y el Apéndice F (sobre el tiempo de cómputo de la TMA) es posible estimar la demanda computacional necesaria.

¹³En particular, en el Apéndice F se muestra que el tiempo de cómputo para un punto de una gráfica de la TMA a la NP de Al de 50 nm de radio, con $\ell_{\max} = 13$, es de ≈ 12 horas [Fig. F.1(e) y F.1(f)], mientras que para un punto de la TMA a una NP de Au de 5 nm de radio, con $\ell_{\max} = 12$, el tiempo es de ≈ 9 horas [Fig. F.1(a) y F.1(b)].

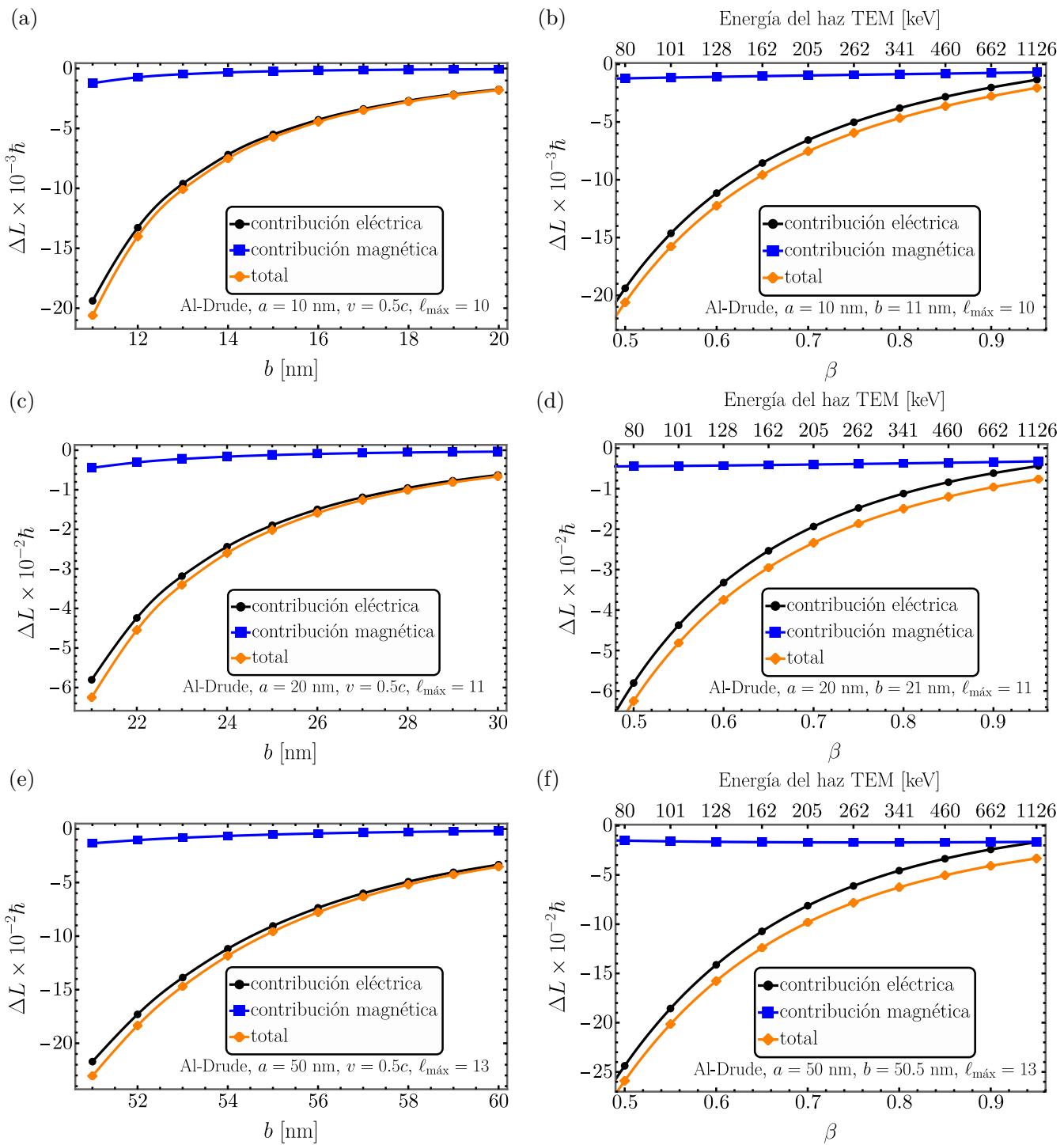


Figura 4.11: Transferencia de momento angular de un electrón rápido a nanopartículas de aluminio grandes. TMA para $a = 10$ nm en función de (a) la rapidez del electrón $\beta = v/c$ para un parámetro de impacto $b = 11$ nm fijo y (b) de b para $v = 0.5c$ fija. TMA para $a = 20$ nm en función de (c) β para $b = 21$ nm fijo y (d) de b para $v = 0.5c$ fija. TMA para $a = 50$ nm en función de (e) β para $b = 50.5$ nm fijo y (f) de b para $v = 0.5c$ fija.

b se aproxima a a y $\Delta L \rightarrow \Delta L_E$ conforme b aumenta. Entonces, al menos para las NPs estudiadas, estas son características generales para la TMA a NPs esféricas.

4.3. Discusión sobre la magnitud de los resultados de la transferencia de momento angular

En la sección anterior se ha presentado un estudio de la TMA a NPs esféricas de distintos materiales y tamaños, abarcando la nanoescala. En todos los resultados que se han presentado en dicha sección se ha encontrado que la magnitud de la TMA es menor que \hbar . Sin embargo, el valor mínimo medible de una componente de momento angular orbital es \hbar [66]. Al tratarse de un modelo clásico, no es incorrecto, desde el punto de vista teórico, que se obtengan momentos angulares orbitales menores que el cuarto mínimo de momento angular. No obstante, dado que este trabajo tiene como una de sus finalidades aportar al entendimiento de la física subyacente a la técnica de pinzas electrónicas, es de importancia fundamental discutir sobre esta cuestión.

Es conveniente revisar los detalles del modelo presentado en este trabajo en el contexto de la teoría general del momento angular en mecánica cuántica. En este modelo, se ha encontrado que el momento angular que el electrón transfiere a la NP es tal que dos de sus componentes son cero [ver Ec. (2.49)] y la restante tiene una magnitud que, para las NPs estudiadas, es menor que \hbar . Sin embargo, las componentes del momento angular cumplen el siguiente principio de incertidumbre [87]:

$$\sigma_{L_x}\sigma_{L_y} \geq \frac{\hbar}{2}|\langle L_z \rangle|, \quad (4.1)$$

en donde σ_{L_i} es la desviación estándar de la componente i del momento angular y $\langle L_z \rangle$ es el promedio de la componente z del momento angular. Por lo tanto, las cantidades que se obtienen del modelo de este trabajo, a partir de la Ec. (2.49), no pueden corresponder a mediciones individuales del momento angular transferido del electrón a la NP. Una alternativa posible es que el modelo de este trabajo y, en consecuencia, los resultados de esta sección, correspondan a promedios y no a mediciones individuales.

Ahora bien, asumiendo que el modelo clásico de este trabajo coincide con el valor esperado de un modelo cuántico de la transferencia de momento angular de un electrón rápido a una nanopartícula, es necesario justificar cómo dicho valor esperado puede ser menor que \hbar , siendo que cada evento de TMA debe ocurrir en múltiplos enteros de \hbar [66]. Dicho de otra manera, ¿cómo puede una suma de múltiplos enteros de \hbar ser menor que \hbar ? Una manera de que ocurra una estadística así es: si dados múltiples eventos (varias realizaciones de electrones viajeros que pueden transferir momento angular a una NP), sólo en una minoría de ellos sí se transfiere momento angular. Por ejemplo, un valor esperado de ΔL de $10^{-4}\hbar$ (como hemos obtenido para NPs de 1 nm de radio, ver Fig. 4.9) podría presentarse si uno de cada diez mil electrones del haz del STEM transfieren momento angular a la NP.

Una pregunta natural que surge entonces es si el modelo clásico predice rotaciones observables de NPs debida a su interacción con el haz STEM, como se ha reportado que ocurren [6, 19, 21, 23]. La respuesta es afirmativa, debido a las corrientes utilizadas en el haz del STEM: las corrientes típicas, del orden de pA, equivalen a trenes de al menos 10^7 electrones emitidos cada segundo, todos los cuales interactúan con la NP y tienen alguna probabilidad de transferirle momento angular. Si, por ejemplo, 10^3 de esos 10^7 de electrones transfieren un cuarto \hbar a la NP, entonces, el promedio de la TMA sería justamente $10^{-4}\hbar$.

En la Fig. 4.12 se ilustran las consecuencias de esta discusión. Imitando el experimento de la Fig. 1.2 de la Introducción, en la Fig. 4.12 se ilustra una NP esférica de oro, en color amarillo, soportada en un sustrato de carbono amorfo, interactuando con el haz de electrones (e^-) de un STEM. Se considera el

el mismo sistema de coordenadas (indicado con flechas verdes) con el que se construyó el modelo teórico de este trabajo (ver Fig. 2.1)¹⁴. En particular, el haz de electrones del STEM entra a la página (en dirección $\hat{\mathbf{e}}_z$), indicado con una cruz amarilla. Después de un tiempo de observación dado, se observa que, como predice el modelo clásico de este trabajo, el momento angular de la NP, transferido por el haz de electrones, es tal que $\langle L_z \rangle = 0 = \langle L_x \rangle$ y $0 < -\langle L_y \rangle < \hbar$. Físicamente, esto se traduce en que la NP recibe, en promedio, la misma cantidad de cuantos de momento angular en la dirección $\hat{\mathbf{e}}_x$ y $-\hat{\mathbf{e}}_x$, y en $\hat{\mathbf{e}}_z$ y $-\hat{\mathbf{e}}_z$, es decir, puede girar alrededor de los ejes x y z siempre y cuando gire lo mismo en un sentido que en el sentido contrario. En contraste, en la dirección $\hat{\mathbf{e}}_y$ la NP sí tiene una dirección preferencial de giro: alrededor del eje $-y$. Es interesante que esta interpretación de los resultados de nuestro modelo es consistente con la información contenida en la Fig. 1.2.

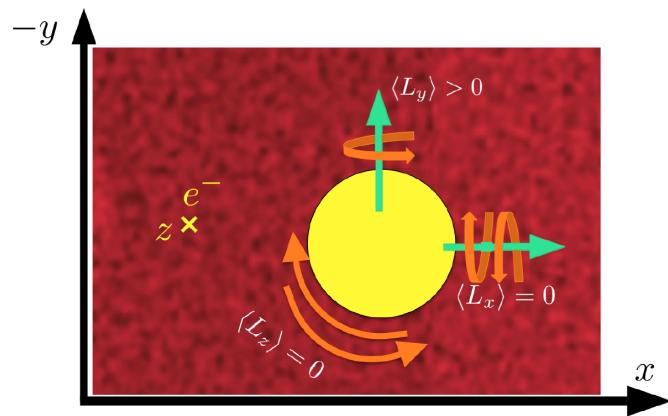


Figura 4.12: Ilustración de la transferencia de momento angular del haz de electrones de un STEM a una nanopartícula de oro sobre un sustrato de carbono amorfó.

En resumen, los resultados que se han obtenido en este trabajo no corresponden a mediciones individuales del momento angular transferido del electrón a la NP, pero podrían corresponder a los valores esperados de la TMA. Para obtener una descripción precisa de la TMA entre pinzas electrónicas y nanopartículas es necesario refinar el modelo presentado en este trabajo para que sea compatible con el formalismo de la mecánica cuántica.

¹⁴Se han añadido, en color negro, ejes coordinados paralelos a los verdes en el borde de la imagen para facilitar su interpretación.

Conclusiones y perspectivas

En este trabajo se ha presentado un análisis teórico del momento angular que un haz de electrones sin vorticidad de un microscopio electrónico de transmisión y de barrido (STEM) transfiere a una nanopartícula, motivado en la tecnología de pinzas electrónicas. Partiendo de un modelo electrodinámico clásico, se han obtenido expresiones para la transferencia de momento angular de un electrón del haz de un STEM a una NP esférica con una respuesta electromagnética homogénea e isótropa. Se han estudiado los casos de nanopartículas esféricas de aluminio, oro y bismuto.

La metodología presentada en este trabajo permite estudiar la transferencia de momento angular a nanopartículas de cualquier tamaño, barriendo la nanoescala. En particular, es posible estudiar el caso de nanopartículas de hasta 50 nm de radio con una respuesta tipo Drude, como se ha hecho en este trabajo para el aluminio. Sin embargo, el estudio de materiales con respuestas electromagnéticas más realistas, como lo son el oro y el bismuto considerados en este trabajo, exceden las capacidades computacionales disponibles. Por lo anterior, en este trabajo se presentan resultados para nanopartículas de aluminio (tipo Drude) de 1 nm, 5 nm, 10 nm, 20 nm y 50 nm de radio, mientras que para las nanopartículas de oro y bismuto sólo se presentan resultados para radios de 1 nm, 5 nm y 10 nm (para 10 nm solamente se presentan resultados en el límite de partícula pequeña).

Se encontró que el momento angular transferido siempre se localiza en la dirección perpendicular tanto a la trayectoria del electrón como a la línea que une el centro de la nanopartícula con la posición más cercana del electrón a ella. Este momento angular tiene una magnitud que aumenta conforme el radio de la nanopartícula crece y que disminuye conforme aumentan la rapidez del electrón y la distancia de su trayectoria a la nanopartícula (parámetro de impacto). En particular, en este trabajo los valores calculados de la transferencia de momento angular tienen un orden de magnitud que va de $10^{-4}\hbar$ para nanopartículas de aluminio, oro y bismuto de 1 nm de radio hasta $10^{-1}\hbar$ para nanopartículas de aluminio de 50 nm. Además, en todos los casos estudiados, dadas las mismas condiciones para la transferencia de momento angular, su magnitud es mayor para las nanopartículas de oro y menor para las de aluminio, quedando el bismuto en medio.

Los campos electromagnéticos totales (los producidos por el electrón y los esparcidos por la nanopartícula) contribuyen a la transferencia de momento angular. En todos los casos estudiados, la contri-

bución del campo eléctrico domina a la del campo magnético, volviéndose comparables para velocidades altas del electrón (mayores al 90 % de la velocidad de la luz). Conforme la trayectoria del electrón se aleja de la nanopartícula (es decir, conforme aumenta el parámetro de impacto), la contribución del campo magnético disminuye. En el límite en que el parámetro de impacto es mucho mayor que el radio (límite de partícula pequeña), la transferencia de momento angular tiene únicamente contribución eléctrica.

Se estableció un criterio de validez (para las nanopartículas de 1 nm de radio de los materiales estudiados) para el cálculo de la transferencia de momento angular utilizando el límite de partícula pequeña. Específicamente, se encontró que este límite es válido siempre y cuando el parámetro de impacto sea mayor o igual que el cuádruple del radio de las nanopartículas y que la velocidad de los electrones supere el 40 % de la velocidad de la luz (lo que equivale a haces de electrones con energías mayores a 47 keV). Utilizando este límite, se encontró que la interacción entre una nanopartícula y un electrón del haz de un STEM ocurre principalmente en la escala de attosegundos. Más aún, se encontró que, en el límite de partícula pequeña, la transferencia de momento angular depende directamente de los mecanismos de extinción de la nanopartícula. De hecho, es posible factorizar la densidad espectral de transferencia de momento angular como el producto de dos funciones: la sección transversal de extinción (que solamente contiene información de la nanopartícula) y la que se ha denominado *función del haz de electrones*, la cual sólo contiene información sobre el electrón.

Perspectivas

Existen muchas posibilidades para continuar con la investigación de la dinámica angular que las pinzas electrónicas inducen en las nanopartículas. En particular, como continuación de este trabajo, sería deseable diseñar y hacer experimentos sobre la dinámica angular inducida por pinzas electrónicas en nanopartículas diversas. Específicamente podrían diseñarse experimentos para comprobar los resultados de este trabajo.

Debido a que, en todos los casos calculados, la transferencia de momento angular resultante tiene una magnitud menor que \hbar , los resultados de este trabajo no corresponden a mediciones individuales del momento angular transferido del electrón a la NP. Sin embargo, los resultados podrían corresponder a los valores esperados de la transferencia de momento angular. Por lo anterior, es necesario refinar el modelo presentado en este trabajo para que sea compatible con el formalismo de la mecánica cuántica. En particular, sería útil desarrollar modelos cuánticos para la transferencia de momento angular y comparar sus resultados con los obtenidos con el modelo clásico de este trabajo.

Desde la perspectiva numérica, es necesario desarrollar una metodología alternativa que permita el cálculo de la transferencia de momento angular a nanopartículas de radios mayores a 5 nm de materiales con respuestas electromagnéticas más realistas que el modelo de Drude, incluyendo el oro y el bismuto considerados en este trabajo. En particular, podría resultar de utilidad aprovechar el programa computacional desarrollado para los cálculos de este trabajo, el cual es público, abierto, gratuito y está disponible en el repositorio [60].

En este trabajo se ha estudiado la transferencia de momento angular a nanopartículas esféricas de aluminio, oro y bismuto. Es necesario extender este estudio considerando nanopartículas de otros materiales de interés, incluyendo materiales dieléctricos. También es necesario estudiar el caso de nanopartículas con formas no esféricas.

Por otra parte, sería útil establecer un modelo para la transferencia de momento angular a nanopartícu-

las con una respuesta electromagnética más general que las consideradas en este trabajo. En particular, sería deseable estudiar el caso de respuestas electromagnéticas espacialmente no locales, es decir, funciones dieléctricas que dependan explícitamente del vector de onda \vec{k} .

Para la comparación con los experimentos reportados en la literatura, valdría la pena desarrollar un modelo para la transferencia de momento angular a nanopartículas soportadas en un substrato.

Finalmente, hace falta un estudio (más allá del límite de partícula pequeña) del comportamiento temporal de la dinámica angular que los haces de electrones de un STEM inducen en nanopartículas de radios mayores a 1 nm.

Comentarios finales

Los avances en las técnicas de microscopía electrónica y, en particular, en las tecnologías de vórtices electrónicos y de pinzas electrónicas requieren del entendimiento de la física subyacente a la interacción entre haces de electrones y nanopartículas. En particular, aún hay mucho por hacer y por entender en el campo de la dinámica angular de nanopartículas debida a su interacción con haces de electrones. Estos temas continúan abiertos y se vuelven cada vez más activos.

En particular, este trabajo y las publicaciones que de él se desprenden son, hasta donde sabemos, los primeros en establecer una metodología teórica y numérica para el estudio la transferencia de momento angular de haces de electrones sin vorticidad a nanopartículas de cualquier tamaño. Se espera que este trabajo sea de utilidad para estudios teóricos futuros y que aporte al entendimiento de la física de las pinzas electrónicas.

Apéndice A

Cuadraturas y cubaturas

Para calcular la transferencia de momento angular (TMA) de un electrón rápido a una nanopartícula, Ecs. (2.70) y (3.39), así como las densidades espectrales de la TMA, Ecs. (2.45) y (3.38), es necesario calcular integrales en una, dos y tres dimensiones. Dada la complejidad de los integrandos, estas integrales se calculan numéricamente. Típicamente, los métodos numéricos para este fin consisten en aproximar las integrales por sumas, las cuales se conocen como *cuadraturas* cuando la dimensión d de la integral es 1, mientras que si $d > 1$ se conocen como *cubaturas* [56]. Actualmente, las cuadraturas generales más eficientes que se conocen son las *cuadraturas gaussianas* [88, 89]. Para el cálculo de integrales en regiones semiinfinitas en las que el integrando tiene una singularidad en la frontera, como es el caso de la Ec. (3.39), la cuadratura más precisa es la *cuadratura de doble exponencial*. En contraste, no existe aún un consenso sobre qué cubatura es la mejor [57]. Sin embargo, algunas cubaturas han mostrado un gran desempeño en el cálculo de amplias familias de integrales múltiples [56–59]. En particular, una de las mejores cubaturas, en cuanto a precisión y tiempo de cómputo, es la *Cubature Routine in Hyperrectangular Regions of Integration* (CUHRE, por sus siglas) [57, 59], la cual se ha utilizado en este trabajo.

En este Apéndice, se presenta una introducción a las cuadraturas gaussianas, la cuadratura de doble exponencial y la cubatura CUHRE.

4.4. Cuadraturas gaussianas

Una cuadratura es un método numérico para calcular el valor aproximado de una integral definida en una dimensión. Específicamente, dada la integral

$$\hat{I}[f] = \int_a^b f(x)p(x)dx, \quad (\text{A.1})$$

con la función de peso $p(x)$, una *fórmula de cuadratura* es [88, 89]

$$\hat{Q}_n[f] = \sum_{i=1}^n w_i f(x_i), \quad (\text{A.2})$$

tal que

$$\hat{I}[f] \approx \hat{Q}_n[f], \quad (\text{A.3})$$

en donde los w_i se conocen como *pesos* y los x_i como *nodos*. Al conjunto de pesos y nodos se les denomina *regla de cuadratura*. Si $\hat{\mathcal{E}}_n[f]$ representa el error que se comete al aproximar a la integral $\hat{I}[f]$ por la cuadratura $\hat{Q}[f]$, entonces

$$\hat{I}[f] = \hat{Q}_n[f] + \hat{\mathcal{E}}_n[f]. \quad (\text{A.4})$$

El propósito fundamental de la cuadratura gaussiana es seleccionar una partición óptima, la cual en general no resulta ser una partición regular, para el cálculo de la integral mostrada en la Ec. (A.1) [90]. La idea consiste en elegir los nodos (en el intervalo $[a, b]$) y los pesos de manera que se reduzca en lo posible el error en la Ec. (A.4). Para esto, se considera que la elección óptima de nodos y pesos es aquella que dé el resultado exacto para cuando $f(x)$ sea un polinomio de cualquier grado menor o igual al grado máximo que permite la aproximación. Dado un valor de n se tienen $2n$ parámetros en la Ec. (A.3), los nodos y los pesos, de modo que el polinomio de grado máximo que puede construirse es uno de grado $2n - 1$, por lo tanto se busca que la Ec. (A.3) sea exacta para polinomios de grado hasta $2n - 1$.

4.4.1. Cuadratura de Gauss-Legendre

Cuando en la Ec. (A.1) la función de peso es $p(x) = 1$ y el intervalo de integración es $(a, b) = (-1, 1)$, la cuadratura gaussiana que se construye se conoce como *cuadratura de Gauss-Legendre* (más adelante quedará claro el por qué del nombre). Como ejemplo, se considera la cuadratura de Gauss-Legendre de orden $n = 2$ para el cálculo de integrales definidas en el intervalo $[-1, 1]$, es decir

$$\int_{-1}^1 f(x) dx \approx w_1 f(x_1) + w_2 f(x_2). \quad (\text{A.5})$$

En este caso, la elección de los pesos y nodos se hace de manera que la Ec. (A.5) sea exacta para polinomios de grado $2n - 1 = 2(2) - 1 = 3$. Cuando $f(x)$ es un polinomio de grado 0, es decir, $f(x) = a_0$ con a_0 una constante, entonces al sustituir en la Ec. (A.5) se encuentra la primera condición que deben satisfacer los pesos y los nodos:

$$a_0 \int_{-1}^1 dx = w_1 a_0 + w_2 a_0, \quad (\text{A.6})$$

es decir,

$$2 = w_1 + w_2. \quad (\text{A.7})$$

Luego, cuando la función es un polinomio de primer grado, $f(x) = b_0 + b_1 x$, con b_0 y b_1 constantes, se obtiene la segunda condición:

$$b_0 \int_{-1}^1 dx + b_1 \int_{-1}^1 x dx = w_1 (b_0 + b_1 x_1) + w_2 (b_0 + b_1 x_2), \quad (\text{A.8})$$

de manera que

$$2b_0 = (w_1 + w_2) b_0 + (w_1 x_1 + w_2 x_2) b_1. \quad (\text{A.9})$$

Sustituyendo la primera condición, Ec. (A.7), en la Ec. (A.9) se obtiene

$$0 = w_1 x_1 + w_2 x_2. \quad (\text{A.10})$$

Análogamente, para polinomios de grado 2, es decir $f(x) = c_0 + c_1 x + c_2 x^2$, se obtiene

$$c_0 \int_{-1}^1 dx + c_1 \int_{-1}^1 x dx + c_2 \int_{-1}^1 x^2 dx = w_1 (c_0 + c_1 x_1 + c_2 x_1^2) + w_2 (c_0 + c_1 x_2 + c_2 x_2^2), \quad (\text{A.11})$$

es decir,

$$2c_0 + \frac{2}{3}c_2 = (w_1 + w_2) c_0 + (w_1 x_1 + w_2 x_2) c_1 + (w_1 x_1^2 + w_2 x_2^2) c_2. \quad (\text{A.12})$$

Sustituyendo las condiciones dadas por las Ecs. (A.7) y (A.10) en la Ec. (A.12) se obtiene que

$$\frac{2}{3} = w_1 x_1^2 + w_2 x_2^2. \quad (\text{A.13})$$

Finalmente, para polinomios de grado 3, $f(x) = d_0 + d_1 x + d_2 x^2 + d_3 x^3$ se tiene, de manera análoga, que

$$\begin{aligned} d_0 \int_{-1}^1 dx + d_1 \int_{-1}^1 x dx + d_2 \int_{-1}^1 x^2 dx + d_3 \int_{-1}^1 x^3 dx = \\ w_1 (d_0 + d_1 x_1 + d_2 x_1^2 + d_3 x_1^3) + w_2 (d_0 + d_1 x_2 + d_2 x_2^2 + d_3 x_2^3), \end{aligned} \quad (\text{A.14})$$

de manera que

$$2d_0 + \frac{2}{3}d_2 = (w_1 + w_2) d_0 + (w_1 x_1 + w_2 x_2) d_1 + (w_1 x_1^2 + w_2 x_2^2) d_2 + (w_1 x_1^3 + w_2 x_2^3) d_3. \quad (\text{A.15})$$

Sustituyendo las condiciones dadas por las Ecs. (A.7), (A.10) y (A.13) en la Ec. (A.15) se obtiene la cuarta condición para los pesos y nodos:

$$0 = w_1 x_1^3 + w_2 x_2^3. \quad (\text{A.16})$$

Las cuatro condiciones forman el siguiente sistema de ecuaciones algebraicas no lineales:

$$\begin{cases} w_1 + w_2 = 2 \\ w_1 x_1 + w_2 x_2 = 0 \\ w_1 x_1^2 + w_2 x_2^2 = \frac{2}{3} \\ w_1 x_1^3 + w_2 x_2^3 = 0 \end{cases} \quad (\text{A.17})$$

cuya solución única es [90]

$$w_1 = 1, \quad w_2 = 1, \quad x_1 = -\frac{\sqrt{3}}{3}, \quad x_2 = \frac{\sqrt{3}}{3}, \quad (\text{A.18})$$

de manera que al sustituir en la Ec. (A.5) se encuentra la siguiente fórmula de aproximación de grado 3¹⁵.

$$\int_{-1}^1 f(x)dx \approx f\left(-\frac{\sqrt{3}}{3}\right) + f\left(\frac{\sqrt{3}}{3}\right). \quad (\text{A.19})$$

4.4.2. Cambio de intervalo de integración

Aunque en el ejemplo anterior se consideró la integral en el intervalo $[-1, 1]$, el resultado anterior puede generalizarse para cualquier intervalo de integración $[a, b]$ mediante un cambio de variable. Si se considera la integral $\int_a^b f(x)dx$ y se hace el cambio de variable [90]

$$t = \frac{2x - a - b}{b - a} \quad (\text{A.20})$$

entonces

$$t(a) = \frac{2a - a - b}{b - a} = \frac{a - b}{b - a} = -1, \quad t(b) = \frac{2b - a - b}{b - a} = \frac{b - a}{b - a} = 1, \quad \text{y} \quad dt = \frac{2}{b - a} dx, \quad (\text{A.21})$$

de manera que, en general,

$$\int_a^b f(x)dx = \left(\frac{b-a}{2}\right) \int_{-1}^1 f\left(\frac{(b-a)t+a+b}{2}\right) dt. \quad (\text{A.22})$$

De este modo, es suficiente considerar el formalismo de la cuadratura de Gauss para integrales en el intervalo $[-1, 1]$ para obtener inmediatamente la misma cuadratura para cualquier intervalo $[a, b]$. De hecho, al aplicar la idea de la cuadratura de Gauss en $[-1, 1]$ a la Ec. (A.22) se obtiene

$$\int_a^b f(x)dx \approx \left(\frac{b-a}{2}\right) \sum_{i=1}^n w_i f\left(\frac{(b-a)x_i + a + b}{2}\right). \quad (\text{A.23})$$

El procedimiento del ejemplo anterior, Ecs. (A.5)-(A.19), es generalizable para encontrar cuadraturas de Gauss de cualquier orden n . Sin embargo, como se aprecia en dicho ejemplo, al considerar esta precisión es necesario resolver un sistema de $2n$ ecuaciones algebraicas no lineales¹⁶ para calcular los pesos y los nodos. Afortunadamente, existen métodos alternativos para encontrar los pesos y los nodos, dependiendo del intervalo de integración y de la función de peso $p(x)$ en la Ec. (A.1), en los cuales se utilizan familias de polinomios ortogonales.

4.4.3. Un método más general para obtener la cuadratura de Gauss-Legendre

Cuando, en la Ec. (A.1), $p(x) = 1$ y $(a, b) = (-1, 1)$, la familia adecuada de polinomios ortogonales para calcular los pesos y nodos resulta ser la de los polinomios de Legendre [88], de ahí el nombre de esta cuadratura. A continuación se muestran los detalles.

¹⁵Es de grado 3 porque la fórmula es exacta hasta polinomios de grado 3.

¹⁶En el ejemplo desarrollado en las Ecs. (A.5)-(A.19), el orden $n = 2$ produjo el sistema algebraico no lineal (A.17) de $2n = 2(2) = 4$ ecuaciones.

Cuando $m = 0$, las funciones asociadas de Legendre $P_n^m(x)$ [63] se convierten en polinomios de grado n , conocidos como *polinomios de Legendre*. Por simplicidad, se acostumbra escribir $P_n^0(x) = P_n(x)$; estos polinomios satisfacen la condición $P_n(1) = 1$. Una de las características importantes de los polinomios de Legendre es que forman una base para el espacio de polinomios y dicha base es ortogonal [91] con el producto interior $\langle \cdot, \cdot \rangle$ definido como

$$\langle F(x), G(x) \rangle = \int_{-1}^1 F(t)G(t)dt, \quad (\text{A.24})$$

en donde $F(x)$ y $G(x)$ son polinomios arbitrarios de cualquier grado. De manera más precisa, el conjunto $\beta = \{P_0(x), P_1(x), P_2(x), \dots, P_k(x)\}$ es una base ordenada ortogonal para el espacio de polinomios de grado k , que satisface [63]

$$\langle P_n(x), P_m(x) \rangle = \frac{2}{2n+1} \delta_{nm}, \quad (\text{A.25})$$

en donde δ_{nm} es la delta de Kronecker. En particular, cualquier polinomio $F(x)$ de grado k puede expresarse como

$$F(x) = \sum_{m=0}^k c_m P_m(x), \quad (\text{A.26})$$

en donde los c_m son un conjunto de constantes. Si $n > k$, utilizando las Ecs. (A.24)-(A.26) se obtiene que

$$\langle F(x), P_n(x) \rangle = \sum_{m=0}^k c_m \langle P_m(x), P_n(x) \rangle = 0, \quad (\text{A.27})$$

es decir, $\int_{-1}^1 F(x)P_n(x)dx = 0$ siempre que $F(x)$ sea un polinomio de grado menor que n .

La última propiedad de los polinomios de Legendre que se necesita para construir la cuadratura de Gauss-Legendre es que $P_k(x)$ es un polinomio de grado k con exactamente k raíces *distintas* en el intervalo $(-1, 1)$ [92].

A continuación se mostrará que, utilizando la fórmula de interpolación de Lagrange, las propiedades anteriores permiten concluir lo siguiente [90]:

Si $P(x)$ es un polinomio de grado menor o igual a $2n - 1$ entonces

$$\int_{-1}^1 P(x)dx = \sum_{i=1}^n w_i P(x_i),$$

en donde x_i es la i-ésima raíz de $P_n(x)$,
el polinomio de Legendre de grado n , y

$$w_i = \int_{-1}^1 \prod_{\substack{j=1 \\ j \neq i}}^n \frac{x - x_j}{x_i - x_j} dx. \quad (\text{A.28})$$

En este caso, para la integral de $P(x)$ se tiene una igualdad y no una aproximación, es decir, la cuadratura es exacta para $P(x)$.

En primer lugar, vale la pena enunciar la *fórmula de interpolación de Lagrange* [91]. Dados c_0, c_1, \dots, c_n

escalares *distintos*, el conjunto de *polinomios interpoladores de Lagrange* $\{f_0(x), f_1(x), \dots, f_n(x)\}$ definidos como

$$f_i(x) = \prod_{\substack{k=0 \\ k \neq i}}^n \frac{x - c_j}{c_i - c_k} \quad (\text{A.29})$$

forma una base para el conjunto de polinomios de grado n tal que, para un polinomio $g(x)$ arbitrario de grado n , se cumple que

$$g(x) = \sum_{i=0}^n g(c_i) f_i(x). \quad (\text{A.30})$$

La Ec. (A.30) es lo que se conoce como fórmula de interpolación de Lagrange.

En particular, como las n raíces del polinomio de Legendre de grado n , $P_n(x)$, son distintas entre sí, se pueden elegir como los escalares c_i para construir polinomios interpoladores de Lagrange que generen a los polinomios de grado $n - 1$. De manera explícita, si x_i es la i -ésima raíz de $P_n(x)$ puede construirse el conjunto $\rho = \{\rho_1(x), \dots, \rho_n(x)\}$ ¹⁷, en donde

$$\rho_i(x) = \prod_{\substack{j=1 \\ j \neq i}}^n \frac{x - x_j}{x_i - x_j}. \quad (\text{A.31})$$

Utilizando la fórmula de interpolación de Lagrange, se tiene que, si $G(x)$ es cualquier polinomio de grado $n - 1$, entonces

$$\begin{aligned} \int_{-1}^1 G(x) dx &= \int_{-1}^1 \sum_{i=1}^n G(x_i) \rho_i(x) dx = \int_{-1}^1 \left[\sum_{i=1}^n \prod_{\substack{j=1 \\ j \neq i}}^n \frac{x - x_j}{x_i - x_j} G(x_i) \right] dx \\ &= \sum_{i=1}^n \left[\int_{-1}^1 \prod_{\substack{j=1 \\ j \neq i}}^n \frac{x - x_j}{x_i - x_j} dx \right] G(x_i), \end{aligned} \quad (\text{A.32})$$

por lo que, definiendo

$$w_i = \int_{-1}^1 \prod_{\substack{j=1 \\ j \neq i}}^n \frac{x - x_j}{x_i - x_j} dx, \quad (\text{A.33})$$

se obtiene que

$$\int_{-1}^1 G(x) dx = \sum_{i=1}^n w_i G(x_i) \quad (\text{A.34})$$

para cualquier polinomio de grado $n - 1$. Más aún, como cualquier polinomio de grado menor que n puede generarse con la base ρ , puede repetirse el procedimiento anterior para encontrar que la Ec. (A.34) es válida para cualquier polinomio de grado menor que n .

¹⁷Nótese que en este caso la numeración comienza en 1, a diferencia de la Ec. (A.29), en donde se comienza en 0. Lo anterior sólo es con el fin de mantener la misma notación de la Ref. [90].

Si ahora se considera un polinomio $P(x)$ de grado $2n - 1$, éste puede dividirse por $P_n(x)$ para obtener

$$P(x) = Q(x)P_n(x) + R(x), \quad (\text{A.35})$$

en donde $Q(x)$ y $R(x)$ son dos polinomios de grado menor que n . Por lo tanto, por la propiedad dada por la Ec. (A.27)

$$\int_{-1}^1 Q(x)P_n(x)dx = 0 \quad (\text{A.36})$$

y como los x_i son raíces de $P_n(x)$, entonces

$$P(x_i) = Q(x_i)P_n(x_i) + R(x_i) = R(x_i). \quad (\text{A.37})$$

Además, como $R(x)$ es de grado menor que n , entonces por la Ec. (A.34) se cumple que

$$\int_{-1}^1 R(x)dx = \sum_{i=1}^n w_i R(x_i), \quad (\text{A.38})$$

por lo tanto, utilizando las Ecs. (A.35)-(A.38) se obtiene que

$$\int_{-1}^1 P(x)dx = \int_{-1}^1 [Q(x)P_n(x) + R(x)] dx = \int_{-1}^1 R(x)dx = \sum_{i=1}^n w_i R(x_i) = \sum_{i=1}^n w_i P(x_i) \quad (\text{A.39})$$

con lo que finalmente se corrobora (A.28). La combinación de (A.23) y (A.28) conforma la cuadratura de Gauss-Legendre. En la pág. 887 de la Ref. [63] se presenta la cuadratura de Gauss-Legendre para una función integrable, dando una expresión más sencilla para los pesos w_i y una estimación para el error de la cuadratura:

Cuadratura de Gauss-Legendre

Si $f(x)$ es una función integrable, entonces la cuadratura de Gauss-Legendre de orden n es

$$\int_a^b f(x)dx = \left(\frac{b-a}{2}\right) \sum_{i=1}^n w_i f(y_i) + R_n, \quad (\text{A.40})$$

cuyos nodos y_i están dados por

$$y_i = \left(\frac{b-a}{2}\right) x_i + \left(\frac{b+a}{2}\right), \quad (\text{A.41})$$

en donde x_i es la i -ésima raíz de $P_n(x)$, el polinomio de Legendre de grado n tal que $P_n(1) = 1$. Los pesos w_i y el error R_n de la cuadratura están dados por

$$w_i = \frac{2}{(1-x_i^2)[P'_n(x_i)]^2} \quad \text{y} \quad R_n = \frac{(b-a)^{2n+1}}{(2n+1)[(2n)!]^3} f^{(2n)}(\xi), \quad (\text{A.42})$$

en donde $P'_n(x_i)$ es la derivada de $P_n(x)$ respecto a su argumento, evaluada en x_i , y $f^{(2n)}(\xi)$ es la derivada de orden $2n$ de la función $f(x)$ evaluada en alguna $\xi \in (a, b)$.

4.4.4. Otras cuadraturas gaussianas

La metodología anterior se puede extender para otras familias de polinomios ortogonales dependiendo de la función de peso y el intervalo de integración en la Ec. (A.1). La cuadratura que se construye en cada caso lleva en su nombre además de “Gauss” el nombre de la familia de polinomios ortogonales utilizada. En la Tabla 4.1 se presentan las cuadraturas gaussianas más comunes [88, 89, 93].

CUADRATURAS GAUSSIANAS MÁS COMUNES		
Intervalo de integración	Función de peso	Cuadratura de Gauss-
(−1, 1)	1	Legendre
(−1, 1)	$1/\sqrt{1-x^2}$	Chebyshev
(−1, 1)	$(1-x)^\alpha(1+x)^\beta; \alpha, \beta > -1$	Jacobi
(0, ∞)	$x^c e^{-x}$	Laguerre
(−∞, ∞)	e^{-x^2}	Hermite

Tabla 4.1: Cuadraturas gaussianas más comunes en términos del intervalo de integración (a, b) y la función de peso $p(x)$ de la Ec. (A.1). Las constantes α , β y c son números reales.

4.4.5. Estimación del error: Reglas anidadas y Cuadratura de Gauss-Kronrod

Una manera para estimar el error del cálculo numérico de una integral consiste en comparar el resultado que se obtiene mediante dos cuadraturas distintas [88, 93]. Dadas dos reglas de cuadratura, \hat{Q}_n y \hat{Q}_m , con $n > m$, una manera conservadora para estimar el error $\hat{\mathcal{E}}$ que se comete al calcular la integral \hat{I} [ver Ecs. (A.1)-(A.4)] es mediante [88, 93]

$$\hat{\mathcal{E}} = \left| \hat{Q}_n - \hat{Q}_m \right|, \quad (\text{A.43})$$

de tal forma que, dada una función f ,

$$\hat{I}[f] = \hat{Q}_n[f] + \hat{\mathcal{E}}[f]. \quad (\text{A.44})$$

Por economía, sería deseable utilizar *reglas anidadas*, es decir, que todos los nodos de \hat{Q}_m fueran a su vez nodos de \hat{Q}_n . Sin embargo, en general dos reglas de Gauss distintas no tienen nodos en común [88]. Afortunadamente, es posible partir de una cuadratura gaussiana \hat{G}_n de orden n para construir una cuadratura \hat{K}_N de mayor orden ($N > n$), conocida como *cuadratura de Gauss-Kronrod*, añadiendo nuevos nodos y pesos [88]. La idea consiste en intercalar $n+1$ nuevos nodos entre los n nodos de \hat{G}_n y asignar nuevos pesos. Explícitamente, si

$$\hat{G}_n[f] = \sum_{i=1}^n w_i f(x_i), \quad (\text{A.45})$$

entonces se considera

$$\hat{K}_{2n+1} = \sum_{i=1}^n a_i f(x_i) + \sum_{j=1}^{n+1} b_j f(y_j). \quad (\text{A.46})$$

La cuadratura \hat{G}_n es de *orden polinomial* $2n - 1$, es decir, es exacta para polinomios hasta de orden $2n - 1$. Kronrod encontró los $3n + 2$ valores de a_i , b_i y y_i de tal modo que \hat{K}_{2n+1} fuera de orden polinomial $3n + 1$ [88]. Las dos reglas $(\hat{G}_n, \hat{K}_{2n+1})$ se conocen como *par de Gauss-Kronrod*. De este modo, al calcular una integral $\hat{I}[f]$ con la cuadratura de Gauss-Kronrod, se aproxima $\hat{I}[f] \approx \hat{K}_{2n+1}[f]$ con un error estimado $\hat{\mathcal{E}}[f] = |\hat{G}_n[f] - \hat{K}_{2n+1}[f]|$.

4.5. Algoritmos adaptativos de integración

Cuando se tiene una expresión para estimar el error de una cuadratura, es posible construir algoritmos para calcular integrales con la precisión que se desee. En particular, dado el error absoluto \mathcal{E}_{abs} que se comete al calcular la integral $\hat{I}[f]$ con la cuadratura $\hat{Q}_n[f]$ [88], es decir,

$$\mathcal{E}_{\text{abs}} = |\hat{I}[f] - \hat{Q}_n[f]|, \quad (\text{A.47})$$

podría construirse un algoritmo que, dada una tolerancia $\delta_{\text{abs}} > 0$, calcule $\hat{I}[f]$ de tal forma que $\mathcal{E}_{\text{abs}} \leq \delta_{\text{abs}}$. Del mismo modo, es posible construir un algoritmo que, dada una tolerancia $\delta_{\text{rel}} > 0$, calcule $\hat{I}[f]$ de modo que $\mathcal{E}_{\text{rel}} \leq \delta_{\text{rel}}$, en donde

$$\mathcal{E}_{\text{rel}} = \frac{|\hat{I}[f] - \hat{Q}_n[f]|}{|\hat{I}[f]|}, \quad (\text{A.48})$$

es el error relativo [88].

Lo anterior ha permitido el desarrollo de distintas rutinas de integración generales, también conocidas como *integradores automáticos*, las cuales reciben como entrada una función f , un intervalo de integración (a, b) y las tolerancias δ_{abs} y δ_{rel} , produciendo como salida un estimado $I_n = \hat{Q}_n[f]$ de la integral $I = \int_a^b f(x)dx$ de modo que el error total

$$\mathcal{E} = |I - I_n| \leq \max(\delta_{\text{abs}}, \delta_{\text{rel}} |I|). \quad (\text{A.49})$$

Los *algoritmos adaptativos de integración* son un tipo particular de integradores automáticos, en los cuales se implementa una estrategia de subdivisión del intervalo de integración original. El funcionamiento general de un algoritmo adaptativo de integración se resume a continuación [88, 93]:

1. Integra la región completa: Calcula la integral I_n^{tot} y el error \mathcal{E}^{tot} en todo el intervalo de integración original, produciendo $I_n^{\text{tot}} \pm \mathcal{E}^{\text{tot}}$.
2. *Mientras* (en el sentido del bucle *while*) $\mathcal{E}^{\text{tot}} \geq \max(\delta_{\text{abs}}, \delta_{\text{rel}} |I|)$:
 - a) Encuentra la región r con el error más grande.
 - b) Subdivide r .
 - c) Integra por separado cada subregión de r .
 - d) $I_n^{\text{tot}} = \sum I_n^i$, $\mathcal{E}^{\text{tot}} = \sum \sqrt{(\mathcal{E}^i)^2}$.
3. Termina el bucle *mientras* (*end while*).

4.6. Intervalos semiinfinitos

Para el cálculo de la transferencia de momento angular es necesario calcular integrales impropias en el intervalo semiinfinito $(0, \infty)$, como puede apreciarse en las Ecs. (2.51) y (3.39). Existen dos métodos comunes para tratar con este tipo de integrales [88]: (i) truncar el intervalo de integración hasta un valor de corte, o bien (ii) realizar un cambio de variable para llevar el intervalo semiinfinito a un intervalo acotado. La elección del método depende del tipo de funciones que se integren. El método de truncamiento es útil cuando es posible mostrar que la contribución de la cola del integrando es despreciable. Ambos métodos pueden implementarse fácilmente en algoritmos adaptativos de integración.

Los cambios de variable más utilizados para el intervalo $(0, \infty)$ son $x = -\ln(t)$ y $x = t/(1-t)$ [88]. En particular, para calcular las integrales de la Ec. (2.70) en este trabajo se utilizó el cambio de variable $\omega = y_\omega/(1-y_\omega)$, el cual satisface que, para una función $f(\omega)$,

$$\int_0^\infty f(\omega) d\omega = \int_0^1 f\left(\frac{y_\omega}{1-y_\omega}\right) \left(\frac{1}{1-y_\omega}\right)^2 dy_\omega. \quad (\text{A.50})$$

Ahora bien, existe otro método para el cálculo de integrales en intervalos semiinfinitos conocido como *cuadratura de doble exponencial*, el cual, desafortunadamente, no se puede implementar en algoritmos adaptativos de integración. Sin embargo, esta cuadratura es muy útil en el caso de integrandos en una dimensión que tienen singularidades en alguno de los puntos de la frontera del intervalo integración [94], como es el caso de la expresión de la TMA en el LPP [ver. Ec. (3.39)]. Por lo anterior, en este trabajo utiliza la cuadratura de doble exponencial para el cálculo de la TMA en el LPP.

La cuadratura de doble exponencial no es óptima para integrales múltiples como las de la Ec. (2.70) debido a que utiliza particiones regulares en lugar de algoritmos adaptativos [94]. Es por esta razón que, en este trabajo, la cuadratura de doble exponencial sólo se utilizó para los cálculos de la TMA en el límite cuasiestático. A continuación se presentan los detalles de esta cuadratura.

4.6.1. Cuadratura de doble exponencial

La cuadratura de doble exponencial fue creada con el propósito de calcular eficientemente integrales en una dimensión que son singulares en alguno de los puntos extremos del intervalo de integración [94]. Si se tiene la integral

$$I = \int_a^b f(x) dx, \quad (\text{A.51})$$

en donde el intervalo (a, b) puede ser finito, semiinfinito $(0, \infty)$ o infinito $(-\infty, \infty)$, y el integrando $f(x)$ es una función analítica en (a, b) que puede tener una singularidad en $x = a$, $x = b$ o ambos, entonces se hace un cambio de variable que transforme a I en una integral en el intervalo $(-\infty, \infty)$, tal que el nuevo integrando decae rápidamente conforme su variable tiende a $\pm\infty$. Explícitamente, se aplica un cambio de variable

$$x = \phi(t), \quad a = \phi(-\infty), \quad b = \phi(\infty), \quad (\text{A.52})$$

en donde $\phi(t)$ es analítica en $(-\infty, \infty)$, tal que

$$I = \int_{-\infty}^{\infty} f(\phi(t)) \phi'(t) dt. \quad (\text{A.53})$$

En la Ec. (A.53) $\phi'(t)$ denota a la derivada de $\phi(t)$ respecto a t . Esta cuadratura recibe el nombre de doble exponencial porque se emplean funciones $\phi(t)$ en la Ec. (A.52) tales que el integrando de la Ec. (A.53) decaiga de forma doblemente exponencial, es decir,

$$|f(\phi(t))\phi'(t)| \approx e^{-c_1 e^{|t|}}, |t| \rightarrow \infty, \quad (\text{A.54})$$

para alguna constante real positiva c_1 [94].

Para calcular la integral de la Ec. (A.53) se utiliza una regla de trapecio, ya que dicha regla es óptima para el cálculo de integrales de funciones analíticas sobre $(-\infty, \infty)$ utilizando particiones regulares [94]. La regla del trapecio consiste en aproximar el área bajo la gráfica de $f(x)$, en el intervalo (a, b) , por la del trapecio formado por $a, b, f(a)$ y $f(b)$. Explícitamente, $\int_a^b f(x)dx \approx [(b-a)/2][f(a)+f(b)]$ [90]. Entonces, considerando una partición regular de orden N del intervalo (a, b) y aplicando la regla del trapecio en cada intervalo se encuentra que

$$\int_a^b f(x)dx \approx \frac{h}{2} \sum_{i=0}^{N-1} [f(x_i) + f(x_{i+1})], \quad (\text{A.55})$$

en donde h es la longitud de los subintervalos generados por la partición. Aplicando la regla del trapecio de la Ec. (A.55) a la integral de la Ec. (A.53) se encuentra que $I \approx I_h$ [94], en donde

$$I_h = h \sum_{k=-\infty}^{k=\infty} f(\phi(kh))\phi'(kh). \quad (\text{A.56})$$

Para la implementación computacional de la Ec. (A.56) es necesario truncar la suma infinita a una suma de $k = -N_-$ a $k = N_+$, es decir, se aproxima $I_h \approx I_h^{(N)}$, donde

$$I_h^{(N)} = h \sum_{k=-N_-}^{N_+} f(\phi(kh))\phi'(kh), \quad N = N_+ + N_- + 1, \quad (\text{A.57})$$

en la cual N denota al número de veces que se evalúa la función f . Dado que el integrando decae de manera doblemente exponencial [como en la Ec. (A.54)], a la Ec. (A.57) se le conoce como *la cuadratura de doble exponencial de orden N* para el cálculo de I [94]. A partir de la Ec. (A.57), los pesos de esta cuadratura son $w_k = h\phi'(kh)$ y los nodos son $x_k = \phi(kh)$. El error de la cuadratura de doble exponencial va como $e^{-c_2 N / \log N}$, para alguna constante positiva c_2 [94].

Algunos cambios de variable [ver Ec. (A.52)] típicos para la cuadratura de doble exponencial son [94]

$$I = \int_{-1}^1 f(x)dx \Rightarrow x = \tanh\left(\frac{\pi}{2} \sinh t\right), \quad (\text{A.58})$$

$$I = \int_0^\infty f(x)dx \Rightarrow x = e^{\left(\frac{\pi}{2} \sinh t\right)}, \quad (\text{A.59})$$

$$I = \int_{-\infty}^\infty f(x)dx \Rightarrow x = \sinh\left(\frac{\pi}{2} \sinh t\right). \quad (\text{A.60})$$

En particular, para el cálculo de la integral de la TMA en el LPP [Ec. (3.39)], en este trabajo se utilizó la Ec. (A.59), implementada en *Wolfram Mathematica* [76]. Específicamente, a partir de las Ecs. (A.57)

y (A.59), la cuadratura de doble exponencial utilizada es

Cuadratura de doble exponencial utilizada para el cálculo de la TMA en el LPP

$$\int_0^\infty f(x)dx \approx \frac{h\pi}{2} \sum_{k=-N_-}^{N_+} f\left(e^{\left[\frac{\pi}{2}\sinh(hk)\right]}\right) \cosh(hk)e^{\left[\frac{\pi}{2}\sinh(hk)\right]}, \quad N = N_+ + N_- + 1. \quad (\text{A.61})$$

4.7. Cubaturas

La integración en dimensiones mayores a uno es un problema complicado que sigue siendo tema de investigación activa [88]. Una primera estrategia para abordar el problema consiste en considerar cuadraturas gaussianas para cada una de las dimensiones de la integral [89]. Sin embargo, esta estrategia no es eficiente debido a que la convergencia puede ser muy lenta. Afortunadamente, se han desarrollado métodos análogos a las cuadraturas, conocidos como *cubaturas*, los cuales han resultado ser muy eficientes para la integración de una gran familia de funciones en varias dimensiones [56–59].

Existen dos tipos de cubaturas [57]: (i) las *probabilísticas*, que utilizan métodos Monte Carlo para la selección nodos (es decir, para hacer la partición) para la integración y (ii) las *deterministas*, en las que la selección de nodos se lleva a cabo de manera controlada (por ejemplo con un algoritmo adaptativo).

4.7.1. Estimación del error: Reglas nulas

Del mismo modo que en el caso de las cuadraturas, las mejores cubaturas son aquellas que dan el estimado del error sin necesidad de realizar muchos más cálculos. De hecho, es posible extender el concepto de reglas anidadas al caso de cubaturas para este fin. Sin embargo, como es de esperarse, la construcción de reglas anidadas es más complicada en el caso multidimensional. Este problema fue resuelto en 1965 por J. N. Lyness [95] introduciendo el concepto de *regla nula*.

Una regla nula \hat{N}_m se asocia a una regla de cubatura \hat{Q}_n ($m < n$) y se construye para dar cero para todas las funciones que \hat{Q}_n integre de manera exacta. Por ejemplo, si en una dimensión

$$\hat{I}[f] = \int_a^b f(x)dx = \sum_{i=1}^n w_i f(x_i) = \hat{Q}_n[f], \quad (\text{A.62})$$

entonces

$$\hat{N}_m[f] = \sum_{i=1}^n p_i f(x_i) = 0, \quad (\text{A.63})$$

en donde los p_i constituyen otro conjunto de pesos. Si la cubatura \hat{Q}_n tiene un orden polinomial N entonces, utilizando \hat{N}_m , es posible construir una cubatura anidada \hat{Q}_m de orden polinomial $M < N$ de la siguiente manera:

$$\hat{Q}_m = \hat{Q}_n + \hat{N}_m, \quad (\text{A.64})$$

con lo que, nuevamente, el error se puede estimar como $\hat{\mathcal{E}} = |\hat{Q}_n - \hat{Q}_m|$. Así, de la Ec. (A.64) se sigue

que

$$\hat{\mathcal{E}} = \left| \hat{N}_m \right|. \quad (\text{A.65})$$

4.7.2. CUHRE

En este trabajo las integrales múltiples de las Ecs. (2.45) y (2.70) se calcularon utilizando una cubatura determinista de estado del arte llamada CUHRE (siglas de *Cubature Routine in Hyperrectangular Regions of Integration*) la cual fue desarrollada por Bernsten et al. en la Ref. [59]. Específicamente, se hizo un programa en el lenguaje *Julia*, disponible en el repositorio [60], utilizando la implementación de CUHRE disponible en la biblioteca CUBA de Thomas Hahn [57].

CUHRE es una cubatura determinista que utiliza un algoritmo adaptativo de integración mediante el uso de reglas nulas para la estimación del error a través de reglas anidadas.

Apéndice B

Solución de Mie extendida

En este Apéndice se presentan los detalles de la solución de Mie extendida mediante lo que se conoce como *Método de Funciones Escalares*, siguiendo la derivación original de la Ref. [65]. La nanopartícula esférica, de radio a , se considera no magnética y caracterizada por una función dieléctrica compleja $\varepsilon(\omega)$, de manera que su relación de dispersión $k = (\omega/c)\sqrt{\varepsilon(\omega)}$ es compleja.

La expansión multipolar del campo electromagnético, en el espacio de frecuencias ω , se puede realizar aplicando la siguiente identidad al campo eléctrico [96, pág. 218]:

$$\vec{E} = \nabla \frac{1}{\nabla^2} (\nabla \cdot \vec{E}) + \vec{L} \frac{1}{L^2} (\vec{L} \cdot \vec{E}) - (\nabla \times \vec{L}) \frac{1}{L^2 \nabla^2} [(\vec{L} \times \nabla) \cdot \vec{E}], \quad (\text{B.1})$$

donde $\vec{L} = -i \vec{r} \times \nabla$ es el operador de momento angular orbital, $i = \sqrt{-1}$ y $L^2 = \vec{L} \cdot \vec{L}$. La Ec. (B.1) puede reescribirse como [65]

$$\vec{E} = \nabla \psi^L + \vec{L} \psi^M - \frac{i}{k_0} \nabla \times \vec{L} \psi^E, \quad (\text{B.2})$$

mediante las *funciones escalares*

$$\psi^L = \frac{1}{\nabla^2} \nabla \cdot \vec{E}, \quad (\text{B.3})$$

$$\psi^E = \frac{-ik_0}{L^2 \nabla^2} (\vec{L} \times \nabla) \cdot \vec{E}, \quad (\text{B.4})$$

$$\psi^M = \frac{1}{L^2} \vec{L} \cdot \vec{E}, \quad (\text{B.5})$$

en donde $k_0 = \omega/c$. En ausencia de cargas y corrientes eléctricas externas, estas funciones escalares satisfacen la ecuación escalar de Helmholtz

$$(\nabla^2 + k_0^2) \psi = 0. \quad (\text{B.6})$$

El campo $\vec{\mathbf{H}}$, que se obtiene aplicando la ley de inducción Faraday a la Ec. (B.2), está dado por

$$\vec{\mathbf{H}} = -\frac{i}{k_0} \nabla \times \vec{\mathbf{L}} \psi^M - \vec{\mathbf{L}} \psi^E. \quad (\text{B.7})$$

En las siguientes secciones se obtienen las funciones escalares para el campo electromagnético (EM) externo, producido por el electrón, y el campo EM esparcido por la NP.

4.8. Campo electromagnético producido por el electrón

En el problema de interés de este trabajo se considera un electrón que viaja siempre en vacío con velocidad constante, por lo tanto los modos longitudinales no contribuyen, es decir, $\psi^L = 0$. Dado que las funciones escalares (B.3)-(B.5) satisfacen la ecuación de Helmholtz, se cumple que $\nabla^2 = -k_0^2$, y así

$$\psi^E = \frac{i}{k_0 L^2} (\vec{\mathbf{L}} \times \nabla) \cdot \vec{\mathbf{E}}. \quad (\text{B.8})$$

Ahora bien, es posible expresar los campos electromagnéticos en términos de una expansión multipolar. Más aún, como el electrón viaja con una velocidad constante en el vacío (y por lo tanto no radia campo EM), la expansión multipolar de los campos EMs que genera consta de ondas esféricas cuyo flujo es cero. Por lo tanto, las funciones escalares que describen el campo EM externo pueden escribirse como [65]

$$\psi^{L,\text{ext}}(\vec{\mathbf{r}}) = 0, \quad (\text{B.9})$$

$$\psi^{E,\text{ext}}(\vec{\mathbf{r}}) = \sum_{\ell=1}^{\infty} \sum_{m=-\ell}^{\ell} (i)^{\ell} j_{\ell}(k_0 r) Y_{\ell,m}(\theta, \varphi) \psi_{\ell,m}^{E,\text{ext}}, \quad (\text{B.10})$$

$$\psi^{M,\text{ext}}(\vec{\mathbf{r}}) = \sum_{\ell=1}^{\infty} \sum_{m=-\ell}^{\ell} (i)^{\ell} j_{\ell}(k_0 r) Y_{\ell,m}(\theta, \varphi) \psi_{\ell,m}^{M,\text{ext}}, \quad (\text{B.11})$$

en donde $j_{\ell}(x)$ son las funciones de Bessel esféricas, (r, θ, φ) son las coordenadas esféricas de $\vec{\mathbf{r}}$ y $Y_{\ell,m}(\theta, \varphi)$ son los armónicos esféricos escalares [63]. Las Ecs. (B.9)-(B.11) son válidas en la región $a < r < b$ (entre la NP y la trayectoria del electrón) y en particular en el cascarón esférico S fuera de la esfera de radio a (ver Fig. 2.1). Los coeficientes $\psi_{\ell,m}^{E,\text{ext}}$ y $\psi_{\ell,m}^{M,\text{ext}}$ se obtienen a partir del campo eléctrico externo, escrito en términos de la función de Green de la ecuación de Helmholtz [97] (el signo menos de la carga del electrón ya está considerado), es decir, de

$$\vec{\mathbf{E}}^{\text{ext}}(\vec{\mathbf{r}}) = \left(\nabla - \frac{ik_0 \vec{\mathbf{v}}}{c} \right) \int e^{i\omega t} G_0(\vec{\mathbf{r}} - \vec{\mathbf{r}}_t) dt, \quad (\text{B.12})$$

donde la función de Green está dada por [39]

$$G_0(\vec{\mathbf{r}} - \vec{\mathbf{r}}_t) = \frac{e^{ik_0 |\vec{\mathbf{r}} - \vec{\mathbf{r}}_t|}}{|\vec{\mathbf{r}} - \vec{\mathbf{r}}_t|}, \quad (\text{B.13})$$

y $\vec{r}_t = \vec{\mathbf{R}}_0 + \vec{\mathbf{v}}t$ describe la trayectoria del electrón. Se considera $t = 0$ cuando el electrón pasa por el punto de su trayectoria más cercano al origen, es decir, $\vec{\mathbf{R}}_0 = b\hat{\mathbf{e}}_x$. Si se expande la función de Green en términos de multipolos y se resuelven las integrales que aparecen en la Ec. (B.12), se obtiene¹⁸

$$\psi_{\ell,m}^{E,\text{ext}} = \frac{-2\pi(i)^{1-\ell} k_0}{c\gamma} \frac{B_{\ell,m}}{\ell(\ell+1)} K_m\left(\frac{\omega b}{v\gamma}\right), \quad (\text{B.14})$$

$$\psi_{\ell,m}^{M,\text{ext}} = \frac{-4\pi(i)^{1-\ell} k_0 v}{c^2} \frac{m A_{\ell,m}^+}{\ell(\ell+1)} K_m\left(\frac{\omega b}{v\gamma}\right), \quad (\text{B.15})$$

en donde $K_m(x)$ son las funciones de Bessel modificadas [63], v es la rapidez (constante) del electrón,

$$B_{\ell,m} = A_{\ell,m+1}^+ \sqrt{(\ell+m+1)(\ell-m)} - A_{\ell,m-1}^+ \sqrt{(\ell-m+1)(\ell+m)}, \quad (\text{B.16})$$

$$A_{\ell,m}^+ = \frac{1}{\beta^{\ell+1}} \sum_{j=m}^{\ell} \frac{(i)^{\ell-j} (2\ell+1)!! \alpha_{\ell,m}}{\gamma^j 2^j (\ell-j)! [(j-m)/2]! [(j+m)/2]!} I_{j,\ell-j}^{\ell,m}, \quad (\text{B.17})$$

con

$$\beta = v/c, \quad (\text{B.18})$$

$$\gamma = \frac{1}{\sqrt{1-\beta^2}}, \quad (\text{B.19})$$

$$\alpha_{\ell,m} = \sqrt{\frac{2\ell+1}{4\pi} \frac{(\ell-m)!}{(\ell+m)!}}, \quad (\text{B.20})$$

y los números $I_{j,\ell-j}^{\ell,m}$ se calculan mediante la siguiente relación de recurrencia

$$(\ell-m) I_{i_1,i_2}^{\ell,m} = (2\ell-1) I_{i_1,i_2+1}^{\ell-1,m} - (\ell+m-1) I_{i_1,i_2}^{\ell-2,m}, \quad (\text{B.21})$$

con los valores iniciales $I_{i_1,i_2}^{m-1,m} = 0$, $I_{i_1,i_2}^{m-2,m} = 0$ y

$$I_{i_1,i_2}^{m,m} = \begin{cases} (-1)^m (2m-1)!! B\left(\frac{i_1+m+2}{2}, \frac{i_2+1}{2}\right), & \text{si } i_2 \text{ es par} \\ 0, & \text{si } i_2 \text{ es impar} \end{cases}, \quad (\text{B.22})$$

en donde $B(x, y)$ es la función beta [63]. Sustituyendo las Ecs. (B.9)-(B.22) en las Ecs. (B.2) y (B.7), se obtienen las expresiones del campo EM producido por el electrón de las Ecs. (2.76) y (2.77), en las cuales los coeficientes A^M y B^E son

$$A^M = (i)^\ell \alpha_{\ell,m} \psi_{\ell,m}^{M,\text{ext}} \quad \text{y} \quad B^E = (i)^\ell \alpha_{\ell,m} \psi_{\ell,m}^{E,\text{ext}}. \quad (\text{B.23})$$

¹⁸Los detalles se encuentran en las secciones A y B, así como en los apéndices A y B de la Ref. [65].

4.9. Campo electromagnético esparcido por la nanopartícula

Las condiciones de frontera de las ecuaciones de Maxwell sobre la superficie de la NP se traducen en condiciones de frontera para las funciones escalares, permitiendo así calcular el campo esparcido por la NP a partir de sus funciones escalares. Las condiciones de frontera para las funciones escalares (B.4) y (B.5) son que [65]

$$\psi^M, \varepsilon\psi^M, \partial\psi^M/\partial r \text{ y } (1+r\partial/\partial r)\psi^E \text{ sean continuas en la frontera de la NP.} \quad (\text{B.24})$$

Debido a la simetría esférica de la nanopartícula, se tiene que, en $r > a$ (la región vacía exterior a la NP), el campo EM esparcido por la NP es una combinación de ondas esféricas entrantes y salientes (respecto al centro de la NP), representadas por las funciones de Hankel esféricas $h_\ell^{(+)} y h_\ell^{(-)}$, respectivamente [66]. Como las fuentes del campo EM esparcido son las cargas y corrientes eléctricas inducidas en la NP debido al campo externo, fuera de la nanopartícula el campo esparcido es una combinación de ondas salientes, es decir,

$$\psi^{M,\text{esp}}(\vec{r}) = \sum_{\ell=1}^{\infty} \sum_{m=-\ell}^{\ell} (i)^{\ell} h_\ell^{(+)}(k_0 r) Y_{\ell,m}(\theta, \varphi) \psi_{\ell,m}^{M,\text{esp}}, \quad (\text{B.25})$$

$$\psi^{E,\text{esp}}(\vec{r}) = \sum_{\ell=1}^{\infty} \sum_{m=-\ell}^{\ell} (i)^{\ell} h_\ell^{(+)}(k_0 r) Y_{\ell,m}(\theta, \varphi) \psi_{\ell,m}^{E,\text{esp}}, \quad (\text{B.26})$$

y nuevamente, por estar en vacío,

$$\psi^{L,\text{esp}}(\vec{r}) = 0. \quad (\text{B.27})$$

Las Ecs. (B.25) y (B.26) satisfacen las condiciones de frontera (B.24) y se relacionan con las funciones escalares del campo externo mediante la *matriz de esparcimiento* [65], es decir

$$\psi_{\ell,m}^{M,\text{esp}} = t_\ell^M \psi_{\ell,m}^{M,\text{ext}} \quad \text{y} \quad \psi_{\ell,m}^{E,\text{esp}} = t_\ell^E \psi_{\ell,m}^{E,\text{ext}}. \quad (\text{B.28})$$

Los coeficientes t_ℓ^M y t_ℓ^E son independientes de m debido a la simetría esférica.

Fuera de la NP, las Ecs. (B.25) y (B.26) satisfacen la ecuación de Helmholtz en el vacío, Ec. (B.6), mientras que dentro de la NP, las funciones escalares deben satisfacer la ecuación

$$(\nabla^2 + k_0^2 \varepsilon) \psi = 0, \quad (\text{B.29})$$

ya que, dentro de la NP, el número de onda es $k = (\omega/c) \sqrt{\varepsilon}$. Resolviendo las Ecs. (B.6) y (B.29) con las condiciones de frontera (B.24) se encuentra para cada ℓ una solución que se comporta como

$$\psi \sim j_\ell(k_0 r) + t_\ell h_\ell^{(+)}(k_0 r), \quad r > a. \quad (\text{B.30})$$

La Ec. (B.30) define los valores de los coeficientes t_ℓ^M y t_ℓ^E . En particular, como la NP considerada es una esfera homogénea, se obtienen las mismas expresiones que en la solución de Mie, es decir, en las Ecs. (B.28) se tiene

$$t_\ell^E = \frac{-j_\ell(x_0) [x_i j_\ell(x_i)]' + \varepsilon j_\ell(x_i) [x_0 j_\ell(x_0)]'}{h_\ell^{(+)}(x_0) [x_i j_\ell(x_i)]' - \varepsilon j_\ell(x_i) [x_0 h_\ell^{(+)}(x_0)]'}, \quad (\text{B.31})$$

$$t_\ell^M = \frac{-x_i j_\ell(x_0) j'_\ell(x_i) + x_0 j'_\ell(x_0) j_\ell(x_i)}{x_i h_\ell^{(+)}(x_0) j'_\ell(x_i) - x_0 h_\ell^{(+)}(x_0) j_\ell(x_i)}, \quad (\text{B.32})$$

donde $x_0 = k_0 a$, $x_i = x_0 \sqrt{\varepsilon}$, a es el radio de la NP, y el símbolo $'$ (*prima*) denota la derivada total de la función respecto a su argumento.

Al sustituir las funciones escalares (B.28) en las Ecs. (B.25) y (B.26), y éstas a su vez en las Ecs. (B.2) y (B.7) se obtienen las Ecs. (2.78) y (2.79) del campo EM esparcido por la NP, en las que los coeficientes C^M y D^E están dados por

$$C^M = (i)^\ell \alpha_{\ell,m} t_\ell^M \psi_{\ell,m}^{M,\text{ext}} \quad \text{y} \quad D^E = (i)^\ell \alpha_{\ell,m} t_\ell^E \psi_{\ell,m}^{E,\text{ext}}. \quad (\text{B.33})$$

Apéndice C

Efecto de las correcciones por tamaño a $\varepsilon(\omega)$ en la TMA

Existen diferentes modelos teóricos para la función dieléctrica de una nanopartícula dependiendo de sus dimensiones [72]. Es posible utilizar un modelo clásico para caracterizar la respuesta electromagnética de nanopartículas metálicas esféricas con radios mayores que 5 nm, mientras que los efectos cuánticos son importantes para las nanopartículas más pequeñas [68, 98]. En particular, para nanopartículas metálicas, diferentes estudios semiciclásicos y cuánticos llegan a la misma conclusión: el ancho Γ^* de las resonancias de Mie se puede expresar como una suma de una contribución independiente del tamaño, Γ_{bulto} , y una contribución dependiente del tamaño, $\Gamma_{\text{tamaño}}$ [68]. Además, para una nanopartícula esférica de radio a , diversos estudios (tanto semiciclásicos como cuánticos) han encontrado que $\Gamma_{\text{tamaño}}$ es proporcional a a^{-1} (véanse las referencias en la Sección 2.2 de la Ref. [68]). Explícitamente,

$$\Gamma_{\text{tamaño}}(a) = A \frac{v_F}{a}, \quad (\text{C.1})$$

en donde v_F es la velocidad de Fermi del material del que se compone la nanopartícula y A es una constante (del orden de 1) cuyo valor específico depende del modelo teórico particular utilizado en la derivación de la Ec. (C.1) [68, 99].

En los cálculos de este trabajo, no se consideran tales correcciones a la función dieléctrica de bullo porque se encontró que, para la transferencia de momento angular, las correcciones son insignificantes para los tamaños de nanopartículas que se consideraron. Para ilustrar este hecho, se muestran a continuación los resultados para el caso de las nanopartículas más pequeñas reportadas en este trabajo. En la Fig. C.1 se muestra la transferencia de momento angular en el límite de partícula pequeña, calculada a partir de la Ec. (3.39), de un electrón rápido a una nanopartícula esférica de aluminio, de radio $a = 1 \text{ nm}$, utilizando la función dieléctrica de Drude empleada en este trabajo, con (línea azul) y sin (línea naranja) la corrección de tamaño dada por la Ec. (C.1), en función de la rapidez $\beta = v/c$ del electrón [con parámetro de impacto $b = 1.5 \text{ nm}$ fijo, Fig. C.1(a)] y en función del parámetro de impacto b [con una rapidez del electrón $v = 0.5c$

fija, Fig. C.1(b)].

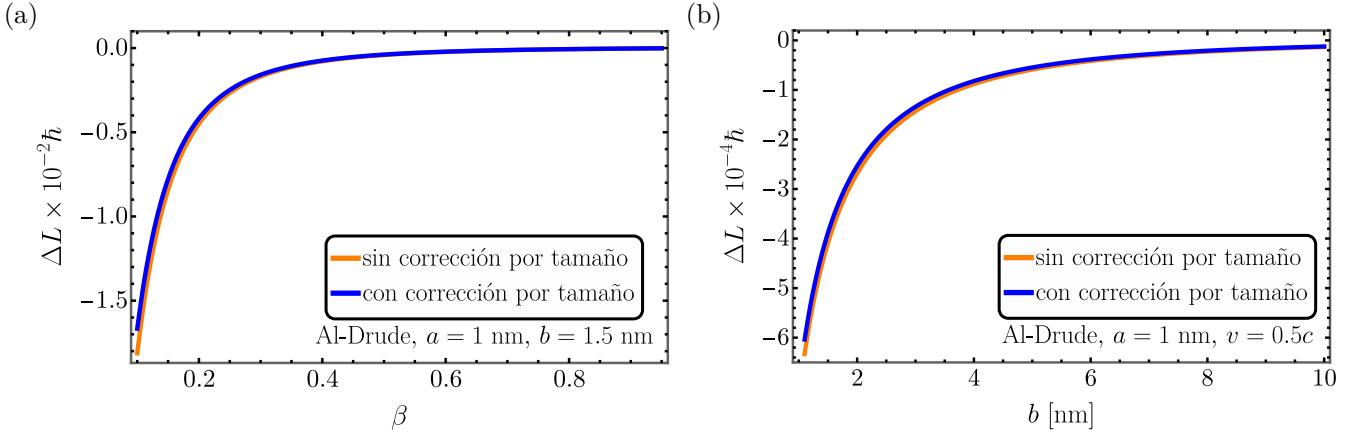


Figura C.1: Transferencia de momento angular de un electrón rápido a una nanopartícula de aluminio de 1 nm de radio (a) en función de la rapidez $\beta = v/c$ del electrón, con un parámetro de impacto fijo $b = 1.5$ nm y (b) en función del parámetro de impacto b , con una rapidez del electrón $v = 0.5c$ fija. La curva naranja corresponde al cálculo utilizando la función dieléctrica (Drude) de bulto, es decir, sin corrección por tamaño, y la curva azul al cálculo con la función dieléctrica con corrección por tamaño.

Específicamente, se utilizaron

$$\varepsilon_{\text{bulto}}(\omega) = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega(\omega + i\Gamma_{\text{bulto}})} \quad (\text{C.2})$$

y

$$\varepsilon_{\text{corregida}}(\omega, a) = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega[\omega + i(\Gamma_{\text{bulto}} + \Gamma_{\text{tamaño}})]}, \quad (\text{C.3})$$

en donde $\hbar\omega_p = 13.142 \text{ eV}$, $\hbar\Gamma_{\text{bulto}} = 0.197 \text{ eV}$ [67] y $\Gamma_{\text{tamaño}}$ dada por la Ec. (C.1), con $A = 1$ [68] y la velocidad de Fermi del aluminio $v_F = 2.03 \times 10^6 \text{ m/s}$ [41].

Como se puede apreciar en la Fig. C.1, la diferencia entre los dos modelos para las funciones dieléctricas es pequeña aún para las nanopartículas más pequeñas consideradas en este trabajo ($a = 1 \text{ nm}$).

Apéndice D

Diferencias con un método previo para el límite de partícula pequeña

En el trabajo previo [10], se reportó la siguiente expresión para $\mathcal{L}(\omega)$ para nanopartículas esféricas pequeñas (nótese que las unidades en la Ref. [10], y por lo tanto en la Ec. (D.1), están en el sistema cgs):

$$\mathcal{L}_{\text{prev}}(\omega) = \frac{16q_e^2\omega^2}{\pi v^4\gamma^3} K_0\left(\frac{\omega b}{\gamma v}\right) K_1\left(\frac{\omega b}{\gamma v}\right) \left\{ \text{Im}[\alpha(\omega)] - \frac{2k^3}{3}|\alpha(\omega)|^2 \right\}, \quad (\text{D.1})$$

en donde el subíndice “prev” significa *previa*. Sin embargo, esta expresión predice un comportamiento diferente al dado por la Ec. (3.38), derivada en este trabajo, como se aprecia en la Fig. D.1, donde se muestran gráficas de ambas expresiones de $\mathcal{L}(\omega)$ para una nanopartícula esférica de aluminio de 1 nm de radio¹⁹. La curva etiquetada como *completa* se calculó usando la Ec. (3.38), mientras que la etiquetada como *previa* se obtuvo a partir de la Ec. (D.1). En la Fig. D.1 se incluye la curva punteada, etiquetada como *aproximada*, obtenida a partir de la Ec. (D.9) (que se obtendrá más adelante en este Apéndice), la cual es una aproximación a la Ec. (3.38) expresada con una estructura similar a la de la Ec. (D.1). Como es de esperarse, las curvas *completa* y *aproximada* se superponen debido al tamaño pequeño de la NP consideradas.

Para determinar cuál expresión de $\mathcal{L}(\omega)$ es la correcta, se calculó la transferencia de momento angular a una NP de aluminio a partir de ambas expresiones y se compararon los resultados con la TMA que se puede calcular directamente de la torca como función del tiempo: A partir de la Ec. (3.40), el momento angular que el electrón transfiere a la nanopartícula es

$$\Delta \vec{\mathbf{L}} = \int_{-\infty}^{\infty} \vec{\mathbf{p}}(t) \times \vec{\mathbf{E}}(t) dt, \quad (\text{D.2})$$

¹⁹Como en el resto de este trabajo, para la NP de aluminio se considera la respuesta electromagnética dada por el modelo de Drude, $\varepsilon(\omega) = 1 - \omega_p^2/[\omega(\omega + i\Gamma)]$, con una frecuencia de plasma $\hbar\omega_p = 13.142 \text{ eV}$ y una constante de amortiguamiento $\hbar\Gamma = 0.197 \text{ eV}$ [67].

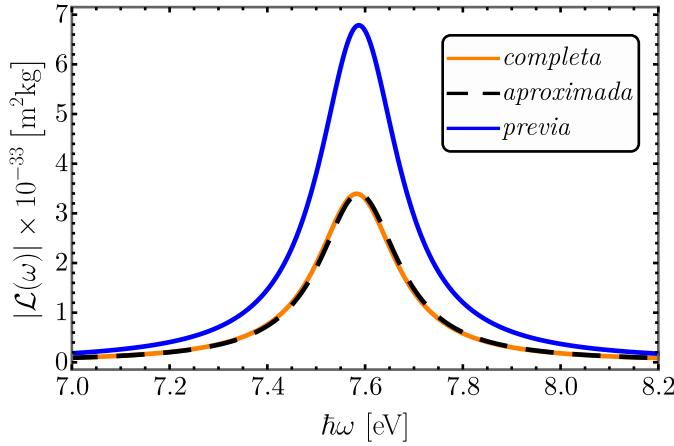


Figura D.1: Magnitud de $\mathcal{L}(\omega)$ de un electrón con $v = 0.5c$ y $b = 4\text{ nm}$ a una nanopartícula esférica de radio $a = 1\text{ nm}$ de aluminio. Las curva con la etiqueta *completa* se obtuvo utilizando la Ec. (3.38), mientras que la de la etiqueta *previa* se obtuvo con la Ec. (D.1), y la etiquetada como *aproximada* a partir de la Ec. (D.9).

con $\vec{\mathbf{E}}(t)$ y $\vec{\mathbf{p}}(t)$ dados en las Ecs. (3.41) y (3.42), respectivamente. Sustituyendo la función dieléctrica de Drude, $\varepsilon(\omega) = 1 - \omega_p^2/[\omega(\omega + i\Gamma)]$, en la polarizabilidad cuasiestática de la Ec. (3.43), se encuentra que [39]

$$\alpha(t') = 4\pi a^3 \omega_s^2 e^{-\frac{\Gamma t'}{2}} \frac{\sin(\Omega_s t')}{\Omega_s} \Theta(t'), \quad (\text{D.3})$$

en donde a es el radio de la NP, $\omega_s = \omega_p/\sqrt{3}$ es la frecuencia de resonancia dipolar, $\Theta(t')$ es la función escalón de Heaviside, la cual es igual a 0 para $t' < 0$ y 1 para $t' > 0$, y

$$\Omega_s^2 = \omega_s^2 - \frac{\Gamma^2}{4}. \quad (\text{D.4})$$

Por lo tanto, al sustituir la Ec. (D.3) en la Ec. (3.42) se encuentra que

$$\vec{\mathbf{p}}(t) = \frac{4\pi\varepsilon_0 a^3 \omega_s^2}{\Omega_s} \int_0^\infty e^{-\frac{\Gamma t'}{2}} \sin(\Omega_s t') \vec{\mathbf{E}}(t-t') dt'. \quad (\text{D.5})$$

Sustituyendo las Ecs. (D.5) y (3.41) en la Ec. (D.2) se encuentra finalmente que

$$\Delta \vec{\mathbf{L}} = -\hat{\mathbf{e}}_y \left(\frac{1}{4\pi\varepsilon_0} \right) \frac{a^3 \omega_s^2 \gamma^2 q_e^2 v b}{\Omega_s} \int_{-\infty}^{\infty} \int_0^\infty t' e^{-\frac{\Gamma t'}{2}} \sin(\Omega_s t') [b^2 + \gamma^2 v^2 t'^2]^{-\frac{3}{2}} [b^2 + \gamma^2 v^2 (t-t')^2]^{-\frac{3}{2}} dt' dt. \quad (\text{D.6})$$

En la Fig. D.2 se muestra la magnitud de la TMA de un electrón viajando con una rapidez $v = 0.5c$ a una NP esférica de aluminio, de radio 1 nm, en función del parámetro de impacto b [Fig. D.2(a)] y de la rapidez del electrón $\beta = v/c$ [Fig. D.2(b)], calculada con los tres métodos discutidos: (i) en naranja, se presenta el resultado obtenido con la Ec. (D.6), la cual se ha etiquetado como el método *tiempo*; (ii) con la línea punteada azul se muestra el resultado que se obtiene con nuestro modelo, integrando la Ec. (3.38), el cual se ha etiquetado como método *frecuencia*; (iii) en rojo se muestra el resultado que se obtiene utilizando $\mathcal{L}_{\text{prev}}$, llamado método *previo*. Es claro que los cálculos realizados en el tiempo coinciden con los del espacio de frecuencias usando nuestra expresión, Ec. (3.38), pero son diferentes de las predicciones del modelo previo. Por tanto, bajo de las aproximaciones de este trabajo, se concluye que la expresión

dada por la Ec. (3.38) es correcta.

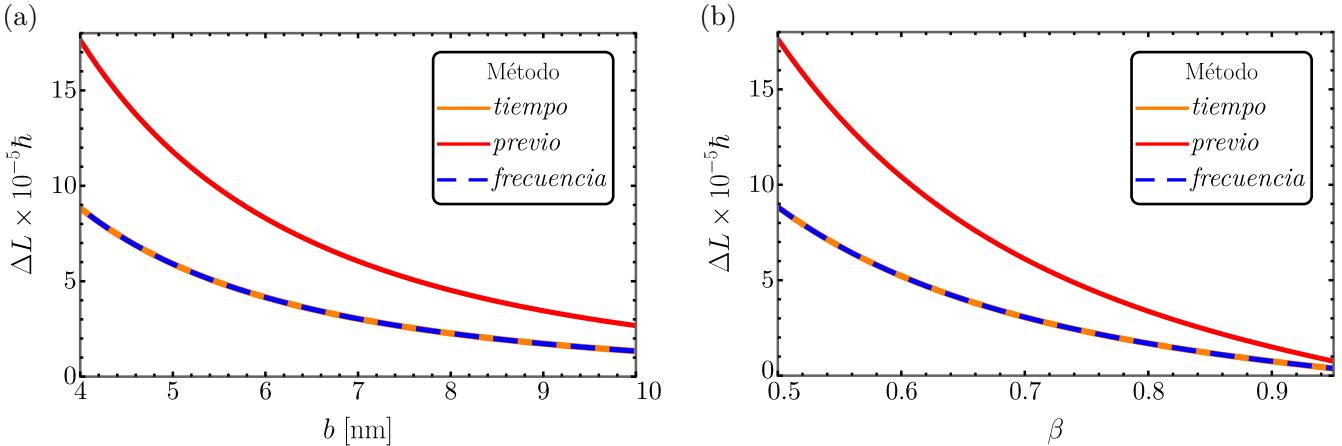


Figura D.2: Magnitud del momento angular transferido de un electrón rápido a una nanopartícula esférica de aluminio de radio $a = 1 \text{ nm}$ (a) en función del parámetro de impacto b con $v = 0.5c$ fija y (b) en función de la rapidez del electrón $\beta = v/c$ con $b = 4 \text{ nm}$ fijo. Las curvas etiquetadas como *tiempo* se obtuvieron utilizando la Ec. (D.6), las curvas *frecuencia* se obtuvieron integrando la Ec. (3.38), mientras que las curvas *previo* se obtuvieron utilizando el modelo previamente reportado en la Ref. [10], dado por la integral de la Ec. (D.1).

Resulta interesante que es posible obtener una expresión para $\mathcal{L}(\omega)$ a partir de la Ec. (3.38) con una forma similar a la de la Ec. (D.1) considerando la polarizabilidad con correcciones radiativas para una esfera, dada por [75]

$$\alpha(\omega) = \frac{\alpha_s(\omega)}{1 - i\alpha_s(\omega)\frac{k^3}{6\pi}} = \alpha_s(\omega) \left[1 + i\alpha_s(\omega)\frac{k^3}{6\pi} + \mathcal{O}(x^6) \right], \quad (\text{D.7})$$

en la cual $\alpha_s(\omega)$ denota la polarizabilidad cuasiestática de una esfera de radio a [39]:

$$\alpha_s(\omega) = 4\pi a^3 \left[\frac{\varepsilon(\omega) - 1}{\varepsilon(\omega) + 2} \right], \quad (\text{D.8})$$

en donde $\varepsilon(\omega)$ es la función dieléctrica de la NP. Sustituyendo $\alpha(\omega)$ de la Ec. (D.7) en la Ec. (3.38), se encuentra que

$$\mathcal{L}(\omega) = - \left(\frac{1}{4\pi\varepsilon_0} \right)^2 \frac{8q_e^2}{\pi v^4 \gamma^3} \frac{\varepsilon_0}{\pi} \omega |\omega| K_0 \left(\frac{|\omega| b}{\gamma v} \right) K_1 \left(\frac{|\omega| b}{\gamma v} \right) \left\{ \text{Im} [\alpha_s(\omega)] + \frac{k^3}{6\pi} [\text{Re}^2 [\alpha_s(\omega)] - \text{Im}^2 [\alpha_s(\omega)]] \right\}, \quad (\text{D.9})$$

que en unidades cgs se expresa como

$$\mathcal{L}_{\text{cgs}}(\omega) = - \frac{8q_e^2 \omega |\omega|}{\pi v^4 \gamma^3} K_0 \left(\frac{|\omega| b}{\gamma v} \right) K_1 \left(\frac{|\omega| b}{\gamma v} \right) \left\{ \text{Im} [\alpha_s^{\text{cgs}}(\omega)] + \frac{2k^3}{3} [\text{Re}^2 [\alpha_s^{\text{cgs}}(\omega)] - \text{Im}^2 [\alpha_s^{\text{cgs}}(\omega)]] \right\}, \quad (\text{D.10})$$

en donde se ha utilizado la versión cgs de las Ecs. (D.7) y (D.8) [100]:

$$\alpha_s^{\text{cgs}}(\omega) = a^3 \left[\frac{\varepsilon(\omega) - 1}{\varepsilon(\omega) + 2} \right], \quad (\text{D.11})$$

$$\alpha(\omega) = \frac{\alpha_s^{\text{cgs}}(\omega)}{1 - i\alpha_s^{\text{cgs}}(\omega)\frac{2k^3}{3}} = \alpha_s(\omega) \left[1 + i\alpha_s^{\text{cgs}}(\omega)\frac{2k^3}{3} + \mathcal{O}(x^6) \right]. \quad (\text{D.12})$$

La primera diferencia entre las Ecs. (D.1) y (D.10) es la polarizabilidad que aparece en cada una. Sin embargo, siempre y cuando se consideren partículas suficientemente pequeñas, α_s es una buena aproximación. Otra diferencia es el signo global de ambas expresiones. La Ec. (D.10) tiene un signo menos global que no está presente en la Ec. (D.1). Esto podría deberse, posiblemente, a que la Ec. (D.1) es una expresión para la magnitud de la densidad espectral a la transferencia del momento angular, dejando el signo menos en la dirección del vector \vec{L} . Sin embargo, las diferencias principales entre ambas expresiones, que causan las discrepancias en la física que predicen, son:

1. **Un factor de 2:** La Ec. (D.1) tiene un 16 en lugar del 8 de la Ec. (D.10).
2. **Los signos en las expresiones entre llaves.** Si se intercambiaran los signos que aparecen en la expresión entre llaves de la Ec. (D.10), la expresión se convertiría en $\text{Im}[\alpha_s^{\text{cgs}}(\omega)] - 2k^3|\alpha_s^{\text{cgs}}(\omega)|^2/3$, la cual, salvo por la polarizabilidad, coincidiría con la expresión entre llaves de la Ec. (D.1).

Apéndice E

Convergencia de los cálculos de la TMA

Como se ha discutido en el texto principal, la convergencia numérica de los cálculos de la transferencia de momento angular (TMA) es fundamental para obtener resultados físicamente confiables [55]. Con este propósito, en este trabajo se han utilizado cuadraturas y cubaturas sofisticadas con las que se tiene control del error cometido al calcular las integrales de la TMA (ver Apéndice A). Específicamente, los programas desarrollados para el cálculo de la TMA a una nanopartícula (NP) dada, disponibles en el repositorio [60], calculan su valor con tres cifras significativas correctas para valores dados de la rapidez del electrón, el parámetro de impacto y el ℓ_{\max} utilizado en el cálculo de los campos electromagnéticos esparcidos [Ecs. (2.78) y (2.79)]. Por lo tanto, únicamente es necesario estudiar la convergencia de la TMA en función del valor de ℓ_{\max} .

En este apéndice se presentan las curvas de convergencia de la TMA en función de ℓ_{\max} para todos los casos presentados en este trabajo. Como se mencionó en el texto principal al discutir la Fig. 4.8, en cada caso es suficiente encontrar el valor de ℓ_{\max} para el cual converge el valor de la TMA para los valores más pequeños de v y b considerados. En todos los casos, el valor más pequeño de la rapidez del electrón es $v = 0.5c$. En cada una de las gráficas de este apéndice:

- Los valores de la TMA para una ℓ_{\max} dada se indican con circunferencias azules, las cuales se han unido con una línea roja discontinua que sirve únicamente como guía al ojo.
- El valor convergido de la TMA (con tres cifras significativas correctas) se indica con una línea discontinua verde.
- Se ha indicado con un círculo amarillo con borde rojo el primer valor de la TMA que coincide con el valor convergido (de la línea discontinua verde). El valor correspondiente de ℓ_{\max} es el que ha sido utilizado, en cada caso, para las gráficas del texto principal de este trabajo.

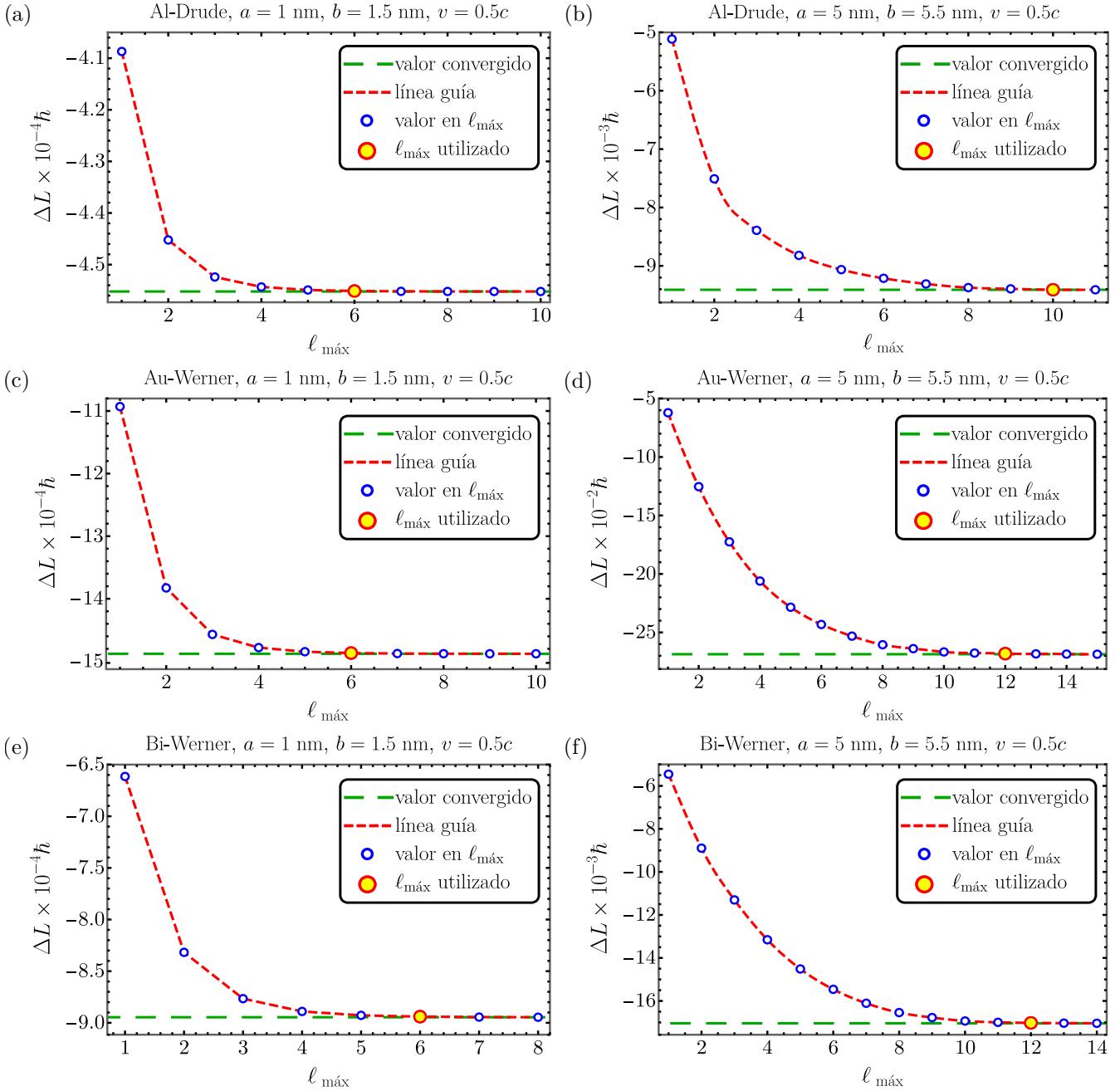


Figura E.1: Curvas de convergencia de la TMA, calculada con una rapidez del electrón $v = 0.5c$ fija, en función de $\ell_{\text{máx}}$, para NPs esféricas de aluminio (a) de radio $a = 1 \text{ nm}$ con $b = 1.5 \text{ nm}$, (b) de $a = 5 \text{ nm}$ con $b = 5.5 \text{ nm}$; para NPs esféricas de oro (c) con $a = 1 \text{ nm}$ y $b = 1.5 \text{ nm}$, (d) con $a = 5 \text{ nm}$ y $b = 5.5 \text{ nm}$, y para NPs esféricas de bismuto (e) con $a = 1 \text{ nm}$ y $b = 1.5 \text{ nm}$ y con (f) $a = 5 \text{ nm}$ y $b = 5.5 \text{ nm}$.

En la columna izquierda de la Fig. E.1 se presentan las curvas de convergencia de los cálculos de la Fig. 4.9, correspondientes al análisis de la validez del límite de partícula pequeña para la TMA. Además, en la columna derecha de la Fig. E.1 se presentan las curvas de convergencia de los cálculos de la Fig. 4.10, correspondientes al estudio de NPs de 5 nm de radio. Específicamente, la columna izquierda de la Fig. E.1 muestra la convergencia de la TMA a NPs de 1 nm de radio cuando $b = 1.5 \text{ nm}$ y $v = 0.5c$, para aluminio [Fig. E.1(a)], oro [Fig. E.1(c)] y bismuto [Fig. E.1(e)]. En la columna de la derecha se muestra la convergencia de la TMA a NPs de 5 nm de radio cuando $b = 5.5 \text{ nm}$ y $v = 0.5c$, para aluminio

[Fig. E.1(b)], oro [Fig. E.1(d)] y bismuto [Fig. E.1(f)]. Se observa que, de manera consistente con el texto principal, $\ell_{\max} = 6$ es suficiente para las NPs de 1 nm de radio (ver Fig. 4.9 y la columna izquierda de la Fig. E.1). Para el caso de la NP de 5 nm de Al, es suficiente considerar $\ell_{\max} = 10$ [ver Figs. 4.10(a), 4.10(b) y E.1(b)], mientras que para las NPs de oro y bismuto de 5 nm de radio es necesario tomar $\ell_{\max} = 12$ [ver Figs. 4.10(c)-(f), E.1(d) y E.1(f)].

En la Fig. E.2(a) se presenta la convergencia de los cálculos de la TMA a NPs de Al de 10 nm de radio [ver Figs. 4.11(a) y (b)], en la Fig. E.2(b) la de los cálculos de la TMA a NPs de Al de 20 nm de radio [ver Figs. 4.11(c) y (d)] y en la Fig. E.2(c) el caso de Al de 50 nm de radio [ver Figs. 4.11(e) y (f)]. Se observa que $\ell_{\max} = 10$ es suficiente para los cálculos de la NP de Al de 10 nm de radio, $\ell_{\max} = 11$ es suficiente para la NP de Al de 20 nm de radio y $\ell_{\max} = 13$ es suficiente para la de 50 nm de radio.

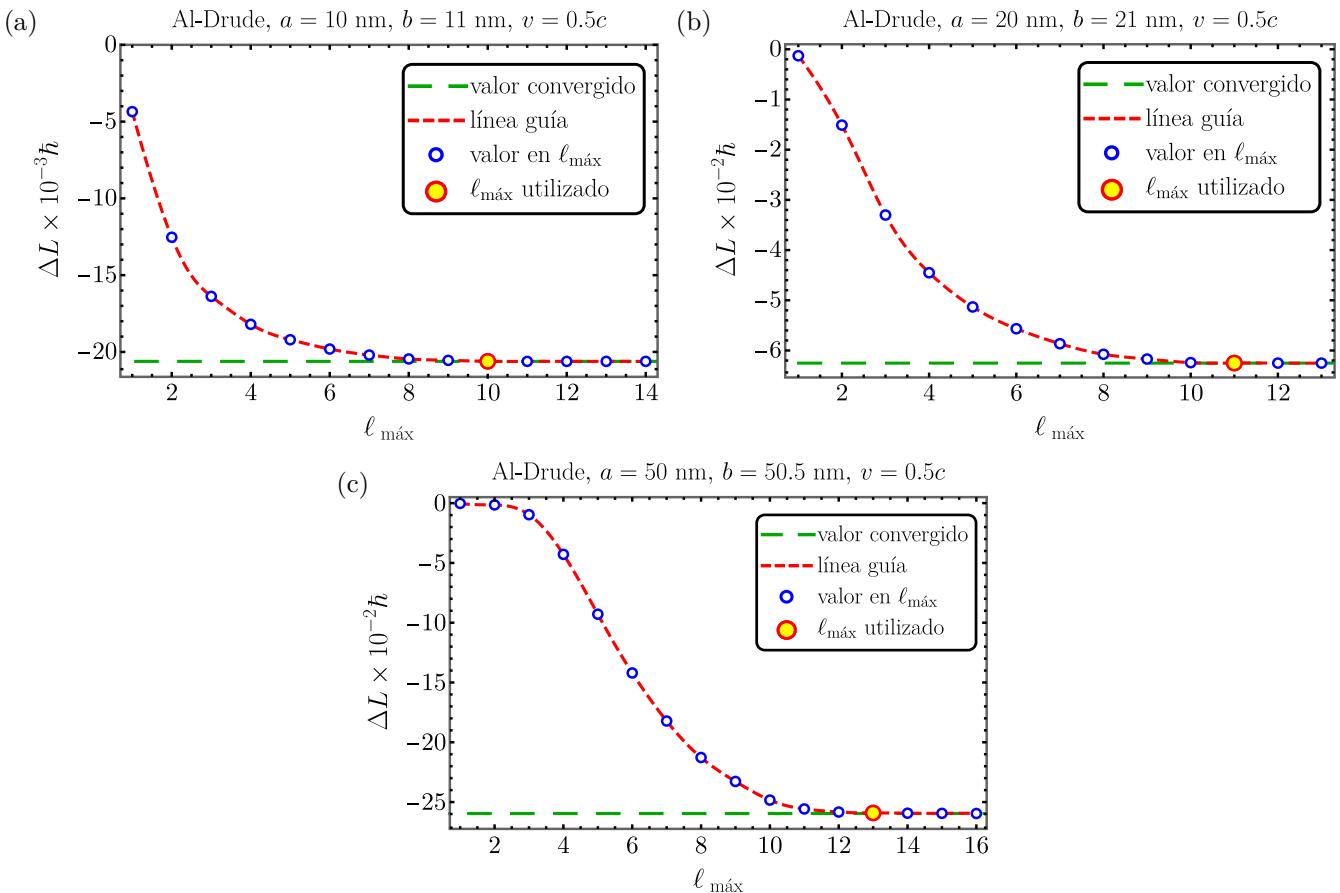


Figura E.2: Curvas de convergencia de la TMA, calculada con una rapidez del electrón $v = 0.5c$ fija, para NPs esféricas de aluminio con (a) $a = 10$ nm y $b = 11$ nm, (b) $a = 20$ nm y $b = 21$ nm y (c) $a = 50$ nm y $b = 50.5$ nm.

Apéndice F

Tiempos de cómputo de la TMA

En este apéndice se presentan los tiempos de cómputo para el cálculo de la transferencia de momento angular (TMA) con el programa desarrollado en *Julia*, disponible en el repositorio [60].

Los cálculos de este trabajo fueron realizados en varias computadoras con características diferentes, así que, para que sean comparables entre sí, en este apéndice se presentan únicamente tiempos de cómputo de los cálculos realizados en la más rápida de dichas máquinas. Específicamente, se presentan los tiempos de los cálculos realizados en una estación de trabajo portátil DELL Precision 3551 con un procesador Intel CORE i5-10400H de décima generación que posee 8 núcleos de 2.60 GHz y una memoria RAM de 8 GB.

Los cálculos más rápidos, como es de esperarse, corresponden a los realizados en el límite de partícula pequeña (LPP), Ec. (3.39). Típicamente, para una nanopartícula dada, el cálculo de la TMA en el LPP, para un valor fijo del radio a , el parámetro de impacto b y la rapidez del electrón v , es menor a un par de segundos. Para ilustrar este hecho, se calculó la TMA a NPs de aluminio, oro y bismuto de 1 nm de radio utilizando $b = 1.5$ nm y $v = 0.5c$, repitiendo el cálculo 100 veces para cada NP. En la Tabla 4.2 se muestran los resultados obtenidos del tiempo de cómputo para estos cálculos.

TIEMPOS DE CÓMPUTO EN EL LPP		
Material	Tiempo promedio	Desviación estándar
aluminio	1.779 s	0.455 s
oro	0.396 s	0.051 s
bismuto	1.246 s	0.213 s

Tabla 4.2: Tiempos de cómputo de la transferencia de momento angular en el límite de partícula pequeña.

El cálculo completo de la TMA, utilizando la Ec. (2.70), es mucho más demandante que el del LPP,

como puede apreciarse en la Fig. F.1.

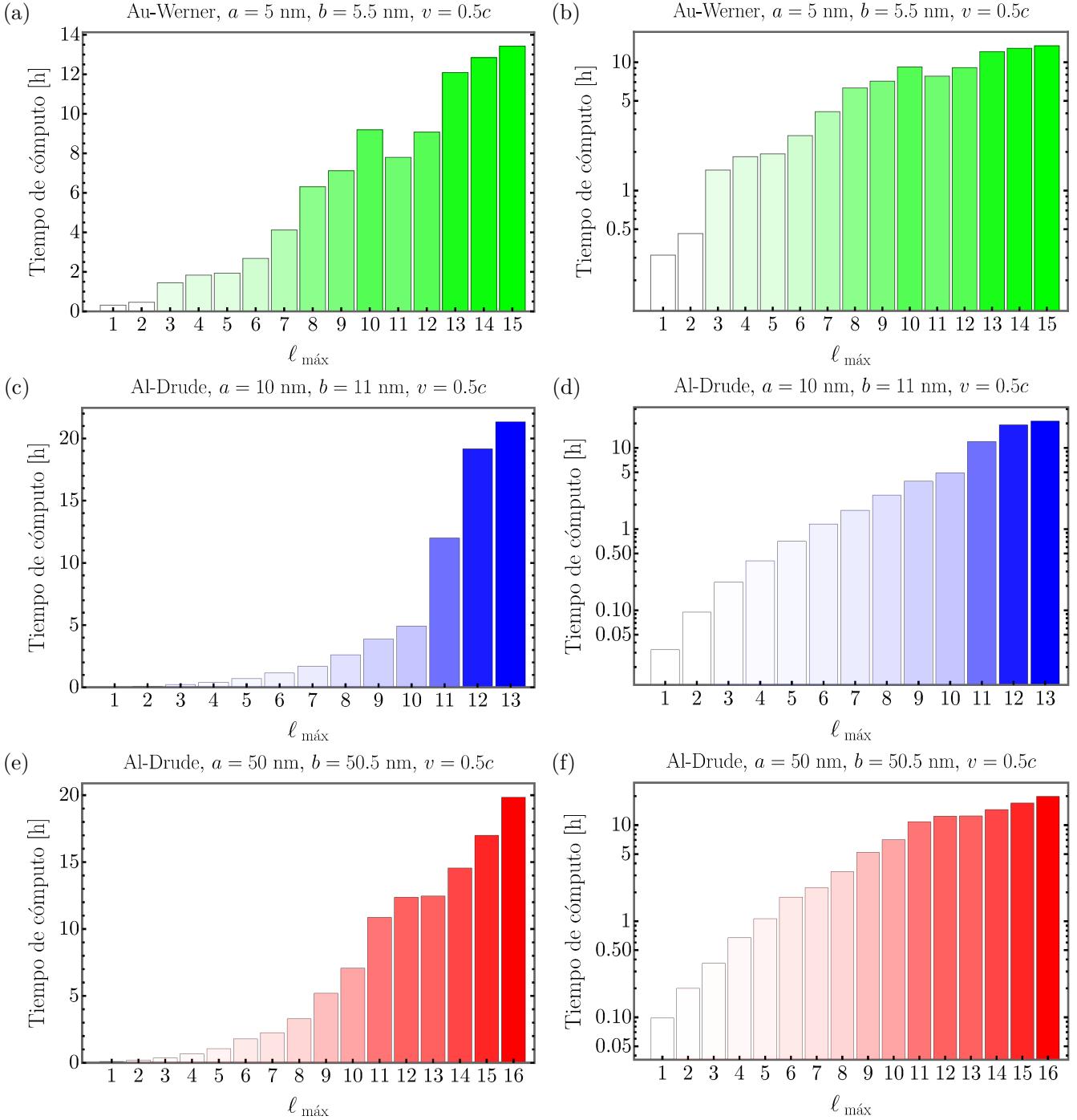


Figura F.1: Tiempo de cómputo de la TMA a $v = 0.5c$ fija, utilizando el programa de *Julia* [60] en una estación de trabajo portátil DELL Precision 3551 con un procesador intel CORE i5-10400H de décima generación con 8 núcleos de 2.60 GHz y 8 GB de memoria RAM, en escala normal (columna izquierda) y en escala logarítmica (columna derecha), para una nanopartícula (a), (b) de oro de 5 nm de radio con $b = 5.5 \text{ nm}$, (c), (d) de aluminio de 10 nm de radio con $b = 11 \text{ nm}$, y (c), (d) de aluminio de 50 nm de radio con $b = 50.5 \text{ nm}$. En todos los casos, la opacidad de las barras es proporcional a su altura.

La columna izquierda de la Fig. F.1 muestra el tiempo de cómputo de la TMA, en horas, para diferentes valores del número ℓ_{\max} de multipolos utilizado para el cálculo de los campos electromagnéticos esparcidos

[Ecs. (2.78) y (2.79)], para una NP de oro, en color verde, de radio $a = 5$ nm con $b = 5.5$ nm y $v = 0.5c$ [Fig. F.1(a)], para una NP de aluminio de radio $a = 10$ nm, en color azul, con $b = 11$ nm y $v = 0.5c$ [Fig. F.1(b)] y para una NP de aluminio de radio $a = 50$ nm, en color rojo, con $b = 50.5$ nm y $v = 0.5c$ [Fig. F.1(c)]. La columna de la derecha de la Fig. F.1 muestra las mismas gráficas que la columna izquierda con el tiempo de cómputo en escala logarítmica. En todos los casos, la opacidad de cada barra es proporcional a su altura.

Dependiendo del material y de número ℓ_{\max} , el tiempo de cómputo puede ir de unos cuantos minutos (para $\ell_{\max} = 1$) hasta decenas de horas para un sólo punto de una de las gráficas de este trabajo. Por ejemplo, para la NP de oro de 5 nm de radio, para la cual se utilizó $\ell_{\max} = 12$ para asegurar su convergencia [ver Fig. E.1(d) y Figs. 4.10(c) y (d)], se invirtieron aproximadamente 9 horas por cada punto, como se puede apreciar en el primer renglón de la Fig. F.1.

Una característica interesante que se puede apreciar de la Fig. F.1 es que el tiempo de cómputo de la NP de Al de 10 nm de radio (segundo renglón) crece más rápido que el de la NP de 50 nm de radio del mismo material, en contra de lo que intuitivamente se esperaría. Esto se debe a que, conforme se llevaron a cabo los cálculos en este trabajo, también se hicieron optimizaciones al programa de cálculo. Por lo tanto, realmente no es correcto comparar estos dos casos, excepto para mostrar la mejora en el tiempo de cómputo de la versión más reciente del programa de cálculo de la TMA.

Lista de publicaciones

En el transcurso del doctorado participé en la publicación de los siguientes trabajos arbitrados:

1.- Electronic tweezers for magnesium oxide nanoparticles (2019)

José Ángel Castellanos-Reyes, Jesús Castrejón-Figueroa, Carlos Maciel-Escudero, Alejandro Reyes-Coronado, [Materials Today: Proceedings, Volume 13, Part 2, 341-348 \(2019\)](#).

En este trabajo se presenta un estudio teórico sobre la transferencia de momento lineal de haces de electrones a nanopartículas de óxido de magnesio con un enfoque a la aplicabilidad de las pinzas electrónicas para la manipulación de nanopartículas dieléctricas.

2.- Time-dependent forces between a swift electron and a small nanoparticle within the dipole approximation (2021)

J. Castrejón-Figueroa, **J. Á. Castellanos-Reyes**, C. Maciel-Escudero, A. Reyes-Coronado, R. G. Barrera, [Physical Review B, Volume 103, Number 15, 155413 \(2021\)](#).

En este trabajo se presenta un estudio teórico, utilizando la aproximación cuasiestática, sobre el comportamiento temporal de la dinámica lineal de nanopartículas pequeñas debido a su interacción con haces de electrones.

3.- Angular dynamics of small nanoparticles induced by non-vortex electron beams (2021)

J. Á. Castellanos-Reyes, J. Castrejón-Figueroa, A. Reyes-Coronado, [Ultramicroscopy, Volume 225, 113274 \(2021\)](#).

En este trabajo se presenta un estudio teórico, utilizando el límite de partícula pequeña, sobre el

comportamiento temporal de la dinámica angular de nanopartículas pequeñas debido a su interacción con haces de electrones. En este trabajo se encuentra el contenido del [Capítulo 3](#) de esta tesis, así como los resultados del [Capítulo 4](#) correspondientes al límite de partícula pequeña y la discusión del [Apéndice D](#).

Además, en este momento se encuentra en proceso de revisión el trabajo

4.- Non-causality and numerical convergence impact on the linear momentum transfer by a swift electron to a metallic nanoparticle

J. Castrejón-Figueroa, **J. Á. Castellanos-Reyes**, A. Reyes-Coronado, [arXiv:2106.04032](https://arxiv.org/abs/2106.04032).

En este trabajo se presenta un estudio teórico sobre los efectos de la no causalidad y la falta de convergencia numérica en los cálculos de la transferencia de momento lineal de haces de electrones a nanopartículas.

Finalmente, vale la pena mencionar que actualmente nos encontramos trabajando en la escritura de dos trabajos:

- El primero, cuyos autores son **J. Á. Castellanos-Reyes**, J. Castrejón-Figueroa y A. Reyes-Coronado, sobre los resultados de la transferencia de momento angular de electrones rápidos a nanopartículas grandes, el cual contiene los resultados principales (sin contar aquellos del límite cuasiestático), del [Capítulo 4](#) de esta tesis.
- El segundo, cuyos autores son J. Castrejón-Figueroa, **J. Á. Castellanos-Reyes** y A. Reyes-Coronado, sobre los resultados de la transferencia de momento lineal de electrones rápidos a nanopartículas grandes que incluyen resultados de la tesis de doctorado de J. Castrejón-Figueroa.

Referencias

- [1] O. Custance, R. Perez y S. Morita. **Atomic force microscopy as a tool for atom manipulation.** *Nat. Nanotechnol.*, 4(12):803–810, 2009. [citado en la pág. 13.]
- [2] J. M. Romo-Herrera, R. A. Alvarez-Puebla y L. M. Liz-Marzán. **Controlled assembly of plasmonic colloidal nanoparticle clusters.** *Nanoscale*, 3(4):1304–1315, 2011. [citado en la pág. 13.]
- [3] O. M. Maragò, P. H. Jones, P. G. Gucciardi, G. Volpe y A. C. Ferrari. **Optical trapping and manipulation of nanostructures.** *Nat. Nanotechnol.*, 8(11):807–819, 2013. [citado en la pág. 13.]
- [4] K. Dholakia y T. Čižmár. **Shaping the future of manipulation.** *Nat. Photonics*, 5(6):335–342, 2011. [citado en la pág. 13.]
- [5] A. Ashkin. **History of optical trapping and manipulation of small-neutral particle, atoms, and molecules.** *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.*, 6(6):841–856, 2000. [citado en la pág. 13.]
- [6] V. Oleshko y J. M. Howe. **Chapter Three - Electron Tweezers as a Tool for High-Precision Manipulation of Nanoobjects.** volumen 179 de *Advances in Imaging and Electron Physics*, págs. 203–262. Elsevier, 2013. [citado en las págs. 13 y 57.]
- [7] A. Ashkin. **Acceleration and Trapping of Particles by Radiation Pressure.** *Phys. Rev. Lett.*, 24(4):156, 1970. [citado en la pág. 13.]
- [8] M. Righini, G. Volpe, C. Girard, D. Petrov y R. Quidant. **Surface Plasmon Optical Tweezers: Tunable Optical Manipulation in the Femtonewton Range.** *Phys. Rev. Lett.*, 100(18):186804, 2008. [citado en la pág. 13.]
- [9] L. Bosanac, T. Aabo, P. M. Bendix y L. B. Oddershede. **Efficient Optical Trapping and Visualization of Silver Nanoparticles.** *Nano Lett.*, 8(5):1486–1491, 2008. [citado en la pág. 13.]
- [10] F. J. G. de Abajo. **Optical excitations in electron microscopy.** *Rev. Mod. Phys.*, 82(1):209–275, 2010. [citado en las págs. 13, 17, 18, 25, 28, 41, 55, 85 y 87.]

- [11] O. L. Krivanek, T. C. Lovejoy, N. Dellby, T. Aoki, R. W. Carpenter, P. Rez, E. Soignard, J. Zhu, P. E. Batson, M. J. Lagos, R. F. Egerton y P. A. Crozier. **Vibrational spectroscopy in the electron microscope**. *Nature*, 514(7521):209–212, 2014. [citado en las págs. 13, 14 y 17.]
- [12] F. S. Hage, R. J. Nicholls, J. R. Yates, D. G. McCulloch, T. C. Lovejoy, N. Dellby, O. L. Krivanek, K. Refson y Q. M. Ramasse. **Nanoscale momentum-resolved vibrational spectroscopy**. *Sci. Adv.*, 4(6):eaar7495, 2018. [citado en las págs. 13, 14 y 17.]
- [13] F. J. G. de Abajo y V. D. Giulio. **Optical Excitations with Electron Beams: Challenges and Opportunities**. *ACS Photonics*, 8(4):945–974, 2021. [citado en las págs. 13 y 17.]
- [14] I. MacLaren, T. A. Macgregor, C. S. Allen y A. I. Kirkland. **Detectors—The ongoing revolution in scanning transmission electron microscopy and why this important to material characterization**. *APL Mater.*, 8(11):110901, 2020. [citado en la pág. 13.]
- [15] F. J. G. de Abajo. **Momentum transfer to small particles by passing electron beams**. *Phys. Rev. B*, 70(11):115422, 2004. [citado en las págs. 13, 17, 18 y 55.]
- [16] J. M. Howe, T. Yokota, M. Murayama y W. A. Jesser. **Effects of heat and electron irradiation on the melting behavior of Al-Si alloy particles and motion of the Al nanosphere within**. *Microscopy*, 53(2):107–114, 2004. [citado en la pág. 13.]
- [17] T. Yokota, J. M. Howe, W. A. Jesser y M. Murayama. **Fractional Brownian motion of an Al nanosphere in liquid Al-Si alloy under electron-beam irradiation**. *J. Appl. Phys.*, 95(10):5756–5761, 2004. [citado en la pág. 13.]
- [18] V. Oleshko y J. M. Howe. **In Situ EFTEM/PEELS Investigation of Melting Behavior of Individual Al-Si Alloy Small Particles**. *Microsc. Microanal.*, 10(S02):350, 2004. [citado en la pág. 13.]
- [19] P. E. Batson, A. Reyes-Coronado, R. G. Barrera, A. Rivacoba, P. M. Echenique y J. Aizpurua. **Plasmonic Nanobilliards: Controlling Nanoparticle Movement Using Forces Induced by Swift Electrons**. *Nano Lett.*, 11(8):3388–3393, 2011. [citado en las págs. 13, 14, 15, 17, 18, 55 y 57.]
- [20] V. Oleshko y J. M. Howe. **“Electron tweezers” as a Tool for In-situ Manipulation and Processing of Individual Metal Nanoparticles in a Two-Phase Partially Molten Alloy**. *Microsc. Microanal.*, 11(S02):1512–1513, 2005. [citado en la pág. 13.]
- [21] V. Oleshko y J. M. Howe. **Are electron tweezers possible?** *Ultramicroscopy*, 111(11):1599–1606, 2011. [citado en las págs. 13 y 57.]
- [22] H. Zheng, U. M. Mirsaidov, L. Wang y P. Matsudaira. **Electron Beam Manipulation of Nanoparticles**. *Nano Lett.*, 12(11):5644–5648, 2012. [citado en la pág. 13.]
- [23] S. Xu, W. Sun, M. Zhang, J. Xu y L. Peng. **Transmission electron microscope observation of a freestanding nanocrystal in a Coulomb potential well**. *Nanoscale*, 2(2):248–253, 2010. [citado en las págs. 13 y 57.]
- [24] O. Cretu, J. A. Rodríguez-Manzo, A. Demortière y F. Banhart. **Electron beam-induced formation and displacement of metal clusters on graphene, carbon nanotubes and amorphous carbon**. *Carbon*, 50(1):259–264, 2012. [citado en la pág. 13.]

- [25] P. E. Batson. Motion of Gold Atoms on Carbon in the Aberration-Corrected STEM. *Microsc. Microanal.*, 14(1):89, 2008. [citado en las págs. 13, 17, 18 y 55.]
- [26] T. Gnanavel, J. Yuan y M. Babiker. Observation of gold nanoparticles movements under sub-10 nm vortex electron beams in an aberration corrected TEM. *Proceedings of the 15th European Microscopy Congress*, 2012. [citado en la pág. 13.]
- [27] J. Verbeeck, H. Tian y A. Béché. A new way of producing electron vortex probes for STEM. *Ultramicroscopy*, 113:83–87, 2012. [citado en la pág. 13.]
- [28] J. Verbeeck, H. Tian y G. V. Tendeloo. How to Manipulate Nanoparticles with an Electron Beam? *Adv. Mater.*, 25(8):1114–1117, 2013. [citado en la pág. 13.]
- [29] P. E. Batson, N. Dellby y O. L. Krivanek. Sub-ångstrom resolution using aberration corrected electron optics. *Nature*, 418(6898):617–620, 2002. [citado en las págs. 13, 17, 18 y 55.]
- [30] A. Reyes-Coronado, R. G. Barrera, P. E. Batson, P. M. Echenique, A. Rivacoba y J. Aizpurua. Electromagnetic forces on plasmonic nanoparticles induced by fast electron beams. *Phys. Rev. B*, 82(23):235429, 2010. [citado en las págs. 13, 17, 18, 25 y 55.]
- [31] E. J. R. Vesseur, J. Aizpurua, T. Coenen, A. Reyes-Coronado, P. E. Batson y A. Polman. Plasmonic excitation and manipulation with an electron beam. *MRS Bull.*, 37(8):752–760, 2012. [citado en las págs. 13, 17, 18 y 55.]
- [32] P. E. Batson, A. Reyes-Coronado, R. G. Barrera, A. Rivacoba, P. M. Echenique y J. Aizpurua. Nanoparticle movement: Plasmonic forces and physical constraints. *Ultramicroscopy*, 123:50–58, 2012. [citado en las págs. 13, 17, 18 y 55.]
- [33] P. E. Batson, A. Rivacoba, P. M. Echenique, J. Aizpurua, R. G. Barrera y A. Reyes-Coronado. Nanoparticle Plasmonic Forces: Pulling and Pushing! *Microsc. Microanal.*, 18(S2):296–297, 2012. [citado en las págs. 13, 17, 18 y 55.]
- [34] M. J. Lagos, A. Reyes-Coronado, P. M. Echenique, J. Aizpurua y P. E. Batson. Attosecond Forces Imposed by Swift Electrons on Nanometer-Sized Metal Particles. *Microsc. Microanal.*, 20(S3):576–577, 2014. [citado en las págs. 13, 17, 18, 44 y 55.]
- [35] M. J. Lagos, A. Reyes-Coronado, A. Konečná, P. M. Echenique, J. Aizpurua y P. E. Batson. Attosecond and femtosecond forces exerted on gold nanoparticles induced by swift electrons. *Phys. Rev. B*, 93(20):205440, 2016. [citado en las págs. 13, 17, 18, 25, 44 y 55.]
- [36] J. Á. Castellanos-Reyes, J. Castrejón-Figueroa, C. Maciel-Escudero y A. Reyes-Coronado. Electronic tweezers for magnesium oxide nanoparticles. *Mater. Today Proceedings*, 13:341–348, 2019. [citado en las págs. 13, 17, 18 y 55.]
- [37] S. M. Lloyd, M. Babiker, G. Thirunavukkarasu y J. Yuan. Electron vortices: Beams with orbital angular momentum. *Rev. Mod. Phys.*, 89(3):035004, 2017. [citado en la pág. 15.]
- [38] Z. Mohammadi, C. P. V. Vlack, S. Hughes, J. Bornemann y R. Gordon. Vortex electron energy loss spectroscopy for near-field mapping of magnetic plasmons. *Opt. Express*, 20(14):15024–15034, 2012. [citado en la pág. 15.]

- [39] J. D. Jackson. *Classical Electrodynamics*. John Wiley & Sons, 2007. [citado en las págs. 17, 35, 41, 78, 86 y 87.]
- [40] NIST. CODATA value: electron mass energy equivalent in MeV. <https://physics.nist.gov/cgi-bin/cuu/Value?eqmec2mev>, 2020. (Recuperado el 21 de abril de 2021). [citado en la pág. 17.]
- [41] N. W. Ashcroft y N. D. Mermin. *Solid State Physics*. New York: Holt, Rinehart and Winston, 1976. [citado en las págs. 17 y 84.]
- [42] M. Quijada, R. D. Muñoz, A. G. Borisov, J. A. Alonso y P. M. Echenique. **Lifetime of electronic excitations in metal nanoparticles**. *New J. Phys.*, 12(5):053023, 2010. [citado en la pág. 17.]
- [43] S. H. Wemple. **Optical oscillator strengths and excitation energies in solids, liquids, and molecules**. *J. Chem. Phys.*, 67(5):2151–2168, 1977. [citado en la pág. 17.]
- [44] E. V. Chulkov, A. G. Borisov, J. P. Gauyacq, D. Sánchez-Portal, V. M. Silkin, V. P. Zhukov y P. M. Echenique. **Electronic Excitations in Metals and at Metal Surfaces**. *Chem. Rev.*, 106(10):4160–4206, 2006. [citado en la pág. 17.]
- [45] A. Rivacoba y P. M. Echenique. **Deflection of STEM electrons by dielectric spheres**. *Ultramicroscopy*, 26(4):389 – 392, 1988. [citado en la pág. 17.]
- [46] J. Krehl, G. Guzzinati, J. Schultz, P. Potapov, D. Pohl, J. Martin, J. Verbeeck, A. Fery, B. Büchner y A. Lubk. **Spectral field mapping in plasmonic nanostructures with nanometer resolution**. *Nat. Commun.*, 9(1):1–6, 2018. [citado en la pág. 17.]
- [47] J. Castrejón-Figueroa, J. Á. Castellanos-Reyes, C. Maciel-Escudero, A. Reyes-Coronado y R. G. Barrera. **Time-dependent forces between a swift electron and a small nanoparticle within the dipole approximation**. *Phys. Rev. B*, 103(15):155413, 2021. [citado en las págs. 17, 18, 35, 44, 48 y 51.]
- [48] G. L. Hornyak, J. J. Moore, H. F. Tibbals y J. Dutta. *Fundamentals of Nanotechnology*. CRC press, 2018. [citado en las págs. 17, 43 y 55.]
- [49] P. A. M. Dirac. **The quantum theory of the electron**. *Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Containing Papers of a Mathematical and Physical Character*, 117(778):610–624, 1928. [citado en la pág. 18.]
- [50] P. W. Milonni. *The Quantum Vacuum: An Introduction to Quantum Electrodynamics*. Academic press, 2013. [citado en la pág. 18.]
- [51] NIST. CODATA value: Compton wavelength. <https://physics.nist.gov/cgi-bin/cuu/Value?ecomwl>, 2020. (Recuperado el 21 de abril de 2021). [citado en la pág. 18.]
- [52] G. W. F. Drake. *Springer Handbook of Atomic, Molecular, and Optical Physics*. Springer Science & Business Media, 2006. [citado en la pág. 18.]
- [53] R. H. Good y T. J. Nelson. *Classical Theory of Electric and Magnetic Fields*. Academic Press, 2013. [citado en las págs. 18, 19 y 31.]

- [54] G. B. Arfken y H. J. Weber. *Mathematical Methods for Physicists*. Academic Press Harcourt Brace Jovanovich, San Diego, 1967. [citado en la pág. 19.]
- [55] J. Castrejón-Figueroa, J. Á. Castellanos-Reyes y A. Reyes-Coronado. Non-causality and numerical convergence impact on the linear momentum transfer by a swift electron to a metallic nanoparticle, 2021. [citado en las págs. 27, 43 y 89.]
- [56] R. Cools. Advances in multidimensional integration. *J. Comput. Appl. Math.*, 149(1):1–12, 2002. [citado en las págs. 27, 63 y 74.]
- [57] T. Hahn. CUBA—a library for multidimensional numerical integration. *Comput. Phys. Commun.*, 176(11-12):712–713, 2007. [citado en las págs. 27, 63, 74 y 75.]
- [58] A. H. Stroud. *Approximate Calculation of Multiple Integrals*. Prentice-Hall, 1971. [citado en las págs. 27, 63 y 74.]
- [59] J. Berntsen, T. O. Espelid y A. Genz. An Adaptive Algorithm for the Approximate Calculation of Multiple Integrals. *ACM Trans. Math. Softw.*, 17(4):437–451, 1991. [citado en las págs. 27, 63, 74 y 75.]
- [60] J. Á Castellanos-Reyes. Angular-momentum-transfer. <https://github.com/castellanos-angel/Angular-Momentum-Transfer>, 2021. [citado en las págs. 27, 60, 75, 89, 93 y 94.]
- [61] E. M. Purcell. *Electricity and Magnetism. Vol. II*. Cambridge University Press, Cambridge, 2011. [citado en la pág. 27.]
- [62] C. Maciel-Escudero y A. Reyes-Coronado. Electromagnetic fields produced by a swift electron: A source of white light. *Wave Motion*, 86:137–149, 2019. [citado en la pág. 28.]
- [63] M. Abramowitz, I. A. Stegun y R. H. Romer. *Handbook of Mathematical Functions with Formulas, Graphs, and Mathematical Tables*. American Association of Physics Teachers, 1988. [citado en las págs. 28, 31, 67, 69, 78 y 79.]
- [64] C. F. Bohren y D. R. Huffman. *Absorption and Scattering of Light by Small Particles*. John Wiley & Sons, 2008. [citado en las págs. 29, 33, 40 y 50.]
- [65] F. J. G. de Abajo. Relativistic energy loss and induced photon emission in the interaction of a dielectric sphere with an external electron beam. *Phys. Rev. B*, 59:3095–3107, 1999. [citado en las págs. 29, 31, 32, 77, 78, 79 y 80.]
- [66] A. Messiah. *Quantum Mechanics*. Dover Publications, 2014. [citado en las págs. 31, 57 y 80.]
- [67] M. I. Marković y A. D. Rakić. Determination of optical properties of aluminium including electron reradiation in the Lorentz-Drude model. *Opt. Laser Technol.*, 22(6):394–398, 1990. [citado en las págs. 31, 43, 46, 84 y 85.]
- [68] U. Kreibig y M. Vollmer. *Optical Properties of Metal Clusters*. Springer Science & Business Media, 2013. [citado en las págs. 31, 40, 46, 83 y 84.]

- [69] C. Hafner, J. Smajic y M. Agio. **Numerical Methods for the Electrodynamic Analysis of Nanostructures**. En: Asok Kumar Ray (editor), *Nanoclusters and Nanostructured Surfaces*, págs. 1–68. American Scientific Publishers, 2010. [citado en la pág. 33.]
- [70] L. D. Landau y E. M. Lifshitz. *Electrodynamics of Continuous Media*. Pergamon, 1984. [citado en las págs. 33, 35, 37 y 39.]
- [71] J. Á. Castellanos-Reyes, J. Castrejón-Figueroa y A. Reyes-Coronado. **Angular dynamics of small nanoparticles induced by non-vortex electron beams**. *Ultramicroscopy*, 225:113274, 2021. [citado en las págs. 35 y 45.]
- [72] C. Kittel. *Introduction to Solid State Physics*. Wiley New York, 1996. [citado en las págs. 39 y 83.]
- [73] S. J. A. van Gisbergen, V. P. Osinga, O. V. Gritsenko, R. van Leeuwen, J. G. Snijders y E. J. Baerends. **Improved density functional theory results for frequency-dependent polarizabilities, by the use of an exchange-correlation potential with correct asymptotic behavior**. *J. Chem. Phys.*, 105(8):3142–3151, 1996. [citado en la pág. 39.]
- [74] S. M. Colwell, N. C. Handy y A. M. Lee. **Determination of frequency-dependent polarizabilities using current density-functional theory**. *Phys. Rev. A*, 53(3):1316, 1996. [citado en la pág. 39.]
- [75] J. Luis-Hita, M. I. Marqués, R. Delgado-Buscalioni, N. de Sousa, L. S. Froufe-Pérez, F. Scheffold y J. J. Sáenz. **Light Induced Inverse-Square Law Interactions between Nanoparticles: “Mock Gravity” at the Nanoscale**. *Phys. Rev. Lett.*, 123(14):143201, 2019. [citado en las págs. 40 y 87.]
- [76] Wolfram Language & System Documentation Center. NIntegrate Integration Strategies. <https://reference.wolfram.com/language/tutorial/NIntegrateIntegrationStrategies.html>, 2021. (Recuperado el 13 de julio de 2021). [citado en las págs. 41 y 73.]
- [77] W. S. M. Werner, K. Glantschnig y C. Ambrosch-Draxl. **Optical Constants and Inelastic Electron-Scattering Data for 17 Elemental Metals**. *J. Phys. Chem. Ref. Data*, 38(4):1013–1092, 2009. [citado en las págs. 43 y 46.]
- [78] A. Reyes-Coronado, C. G. Ortíz-Solano, N. Zabala, A. Rivacoba y R. Esquivel-Sirvent. **Analysis of electromagnetic forces and causality in electron microscopy**. *Ultramicroscopy*, 192:80–84, 2018. [citado en la pág. 43.]
- [79] J. Toudert, R. Serna y M. J. de Castro. **Exploring the Optical Potential of Nano-Bismuth: Tunable Surface Plasmon Resonances in the Near Ultraviolet-to-Near Infrared Range**. *J. Phys. Chem. C*, 116(38):20530–20539, 2012. [citado en la pág. 43.]
- [80] A. Cuadrado, J. Toudert y R. Serna. **Polaritonic-to-Plasmonic Transition in Optically Resonant Bismuth Nanospheres for High-Contrast Switchable Ultraviolet Meta-Filters**. *IEEE Photonics J.*, 8(3):1–11, 2016. [citado en la pág. 43.]
- [81] J. Toudert, R. Serna, I. Camps, J. Wojcik, P. Mascher, E. Rebollar y T. A. Ezquerra. **Unveiling the Far Infrared-to-Ultraviolet Optical Properties of Bismuth for Applications in Plasmonics and Nanophotonics**. *J. Phys. Chem. C*, 121(6):3511–3521, 2017. [citado en la pág. 43.]

- [82] A.V. Naumov. **World market of bismuth: A review.** *Russ. J. Non-ferrous Metals*, 48:10–16, 2007. [citado en la pág. 43.]
- [83] W. Hauser. *Introduction to the Principles of Mechanics.* Addison-Wesley Publishing Company, 1965. [citado en la pág. 47.]
- [84] C. Louis y O. Pluchery. *Gold Nanoparticles for Physics, Chemistry and Biology.* World Scientific, 2012. [citado en la pág. 47.]
- [85] D. J. Griffiths. *Introduction to Electrodynamics.* Prentice Hall, 1999. [citado en la pág. 49.]
- [86] J. Verbeeck, S. Hens, P. Potapov y D. Schryvers. **ELECTRON ENERGY LOSS SPECTROMETRY.** En: P. Worsfold, A. Townshend y C. Poole (editores), *Encyclopedia of Analytical Science (Second Edition)*, págs. 324–331. Elsevier, Oxford, 2005. [citado en la pág. 53.]
- [87] L. E. Ballentine. *Quantum Mechanics: A Modern Development.* World Scientific Publishing Company, 2014. [citado en la pág. 57.]
- [88] D. Kahaner, C. Moler y S. Nash. *Numerical Methods and Software.* Prentice-Hall, Inc., 1989. [citado en las págs. 63, 64, 66, 70, 71, 72 y 74.]
- [89] W. H. Press, H. William, S. A. Teukolsky, W. T. Vetterling, A. Saul y B. P. Flannery. *Numerical Recipes 3rd Edition: The Art of Scientific Computing.* Cambridge university press, 2007. [citado en las págs. 63, 64, 70 y 74.]
- [90] R. L. Burden y J. D. Faires. *Análisis Numérico.* International Thomson Editores, 1998. [citado en las págs. 64, 65, 66, 67, 68 y 73.]
- [91] S. H. Friedberg, A. J. Insel y L. E. Spence. *Linear Algebra.* Pearson Education, 2003. [citado en la pág. 67.]
- [92] V. I. Arnold. *Lectures on Partial Differential Equations.* Springer Science & Business Media, 2013. [citado en la pág. 67.]
- [93] A. Ralston y P. Rabinowitz. *A First Course in Numerical Analysis.* Dover Publications, 2001. [citado en las págs. 70 y 71.]
- [94] M. Mori y M. Sugihara. **The double-exponential transformation in numerical analysis.** *J. Comput. Appl. Math.*, 127(1-2):287–296, 2001. [citado en las págs. 72 y 73.]
- [95] J. N. Lyness. **Symmetric integration rules for hypercubes. III. Construction of integration rules using null rules.** *Math. Comp.*, 19(92):625–637, 1965. [citado en la pág. 74.]
- [96] F. E. Low. *Classical Field Theory: Electromagnetism and Gravitation.* John Wiley & Sons, 2008. [citado en la pág. 77.]
- [97] C. A. Maciel Escudero. **Linear momentum transfer from swift electrons to small metallic nanoparticles: dipole approximation.** Tesis de maestría, Universidad Nacional Autónoma de México, 2017. [citado en la pág. 78.]

- [98] R. A. de la Osa, J. M. Sanz, J. M. Saiz, F. González y F. Moreno. **Quantum optical response of metallic nanoparticles and dimers.** *Opt. Lett.*, 37(23):5015–5017, 2012. [citado en la pág. 83.]
- [99] W. A. Kraus y G. C. Schatz. **Plasmon resonance broadening in small metal particles.** *J. Chem. Phys.*, 79(12):6130–6139, 1983. [citado en la pág. 83.]
- [100] B. T. Draine. **The discrete-dipole approximation and its application to interstellar graphite grains.** *Astrophys. J.*, 333:848–872, 1988. [citado en la pág. 87.]