

مطالعه دورنگی خطی نانو ذرات بیضی گون نقره

آتوسا خلیلی زاده^۱، ابراهیم مددی^۲ و مجتبی نصیری زرنندی^۱

۱- زنجان، دانشگاه زنجان، دانشکده علوم

۲- بوبین زهرا، مرکز آموزش عالی فنی و مهندسی بوبین زهرا، دانشکده علوم مهندسی و فیزیک

چکیده - در این مقاله از روش دو قطبی های جفت شده برای مطالعه پاسخ مگنتو-اپتیکی نانو ذرات بیضی گون نقره استفاده می کنیم و دورنگی خطی این ذرات را در حضور میدان مغناطیسی استاتیکی کوچک مورد بررسی قرار می دهیم. دو رنگی خطی نانو ذره تنها به صورت تحلیلی محاسبه می شود و نشان می دهیم که دایمر این نانو ذرات نیز دو رنگی خطی بروز می دهد. دو رنگی خطی این نانو ذرات به جهت نور فرودی نسبت به امتداد قطر بزرگ بیضی گون و جهت میدان مغناطیسی حساس است.

کلید واژه- بیضی گون، تقریب دوقطبی، دورنگی، سطح مقطع جذب.

Investigation of linear dichroism in spheroidal silver nanoparticles

A. Khalilizadeh¹, E. Madadi², M. Nasiri¹

1- Department of Physics, Faculty of Science, University of Zanjan

2- Department of Science Engineering and Physics, Buein Zahra Technical University, Buein Zahra, Qazvin

Abstract- In this paper we apply the coupled dipole method to study the magneto-optical response of silver nanoparticles. We study the linear dichroism of spheroidal nanoparticles in the presence of small static magnetic field. The dichroism of single nanoparticle is calculated analytically. We show that single and dimer of spheroidal nanoparticles exhibit linear dichroism which depends on the direction of incident light with respect to direction major axis of spheroid and the static magnetic field.

Keywords: spheroid, dipole approximation, dichroism, absorption cross section.

۱- مقدمه

که k عدد موج در محیط است. α و β مختصه‌های دکارتی هستند [3].

۲-۱- تانسور قطبش یک نانوذره

برای الکترونی که تحت میدان پایای مغناطیسی $\vec{B} = B(b_x, b_y, b_z)$ و میدان نوسانی الکتریکی $\vec{E}(t) = \vec{E}(\omega) \exp(-i\omega t)$ نور قرار دارد، معادله حرکت الکترون را حل می‌کنیم. در این مقاله کلیه محاسبات در دستگاه cgs انجام شده است. برای میدان مغناطیسی کمتر از یک تسلا، فرکانس سیکلوترونی $\omega_c = eB/(m_e c)$ از فرکانس نور فرودی بسیار کوچکتر است. بنابراین تانسور ضریب دی‌الکتریک توده ماده تا مرتبه اول ω_c / ω به صورت زیر به دست می‌آید:

$$\varepsilon(\omega) = \begin{pmatrix} \varepsilon_{xx}(\omega) & iG\omega_c b_z & -iG\omega_c b_y \\ -iG\omega_c b_z & \varepsilon_{xx}(\omega) & iG\omega_c b_x \\ iG\omega_c b_y & -iG\omega_c b_x & \varepsilon_{xx}(\omega) \end{pmatrix} \quad (۳)$$

$$G = \frac{\omega_p^2}{\omega(\omega + i\Gamma)} \quad , \quad \varepsilon_{xx}(\omega) = 1 - \frac{\omega_p^2}{(\omega^2 + i\Gamma\omega)}$$

فرکانس پلاسمونی $\omega_p = \sqrt{4\pi m_e e^2 / m_e}$ ، جرم الکترون m_e ، بار الکترون e ، چگالی الکترون‌های رسانش n_e و Γ ثابت آسایش هستند [۱]. با توجه به رابطه (۳) عناصر غیر قطری ماتریس بسیار کوچک هستند و اثر مغناطیواینتیکی ناچیز توده ماده را نشان می‌دهند. نانوذره‌ای که در نظر می‌گیریم بصورت بیضی‌گون با نیم‌محور بزرگ b و نیم‌محور کوچک a است. در ضمن شعاع مقطع دایره‌ای بیضی‌گون نیز می‌باشد. رابطه قطبش‌پذیری این ذره با ضریب دی‌الکتریک $\vec{\varepsilon}$ در دستگاه مختصات دکارتی متصل به ذره عبارتست از [۴]:

$$\vec{\alpha}_j = \frac{a^2 b}{3} \frac{\vec{\varepsilon} - \varepsilon_m \vec{I}}{\varepsilon_m \vec{I} + (\vec{\varepsilon} - \varepsilon_m \vec{I}) L_j}, \quad j=1,2 \quad (۴)$$

که در آن $\vec{\varepsilon}$ و ε_m ضریب دی‌الکتریک ذره و محیط و $\vec{I}$ ماتریس واحد است و همچنین L_1 و L_2 به صورت:

$$L_1 = \left(\frac{a^2 b}{2}\right) \int_0^\infty \frac{dq}{(b^2 + q) f(q)}$$

کسر انرژی جذب شده توسط ذراتی که تحت تابش الکترومغناطیسی قرار می‌گیرند با سطح مقطع جذب آنها تعیین می‌گردد. اهمیت این کمیت بدلیل قابلیت اندازه‌گیری آن در آزمایشات تجربی است. وقتی نانوذرات فلزهای بی‌اثر توسط تابش الکترومغناطیس برانگیخته می‌شوند، نوسان جمعی الکترون‌های رسانشی رخ می‌دهد که منجر به تشدید پلاسمونی و جذب بیشتر در طول موج‌های خاصی می‌شود. در صورتی که نور تابشی دارای قطبش خطی به ذره دست‌نشان بتابد، با توجه به عدم تقارن هندسی سیستم، سطح مقطع جذب برای قطبش‌های متعامد خطی نور متفاوت است [1]. این تفاوت دورنگی خطی است که پایه و اساس طیف سنجی دورنگی خطی می‌باشد. این طیف سنجی در آزمایشگاه‌های زیستی بسیار پر کاربرد است و برای تعیین جهت‌گیری ذره مورد مطالعه از آن استفاده می‌شود [۲].

۲- مدل ریاضی

هرگاه طول موج نور تابشی از اندازه ذره تحت تابش بسیار بزرگتر باشد می‌توان از تقریب دوقطبی برای مطالعه برهم کنش آن با نور استفاده کرد. در این تقریب، هر ذره یک دوقطبی نقطه‌ای در نظر گرفته می‌شود. اگر ماتریس قطبش‌پذیری ذره واقع در $\vec{r}_i$ را α بنامیم و ممان دوقطبی آن را با $\vec{d}_i$ نشان دهیم با توجه به اینکه میدان موضعی در $\vec{r}_i$ ، حاصل برهم‌نهی میدان تابشی و تمامی میدان‌های ثانویه پراکنده شده توسط سایر دوقطبی‌ها هست خواهیم داشت:

$$\vec{d}_i = \varepsilon_m \vec{\alpha} [\vec{E}_{inc}(\vec{r}_i) + \sum_j \vec{G}(\vec{r}_i - \vec{r}_j) \cdot \vec{d}_j] \quad (۱)$$

که عبارت $\vec{G}(\vec{r}_i - \vec{r}_j) \cdot \vec{d}_j$ نشان دهنده میدان تابشی از دوقطبی است که توسط ذره j ام در مکان ذره i ام تولید می‌شود و $\vec{G}(\vec{r}_i - \vec{r}_j)$ با رابطه زیر بدست می‌آید:

$$G_{\alpha\beta}(\vec{r}_{ij}) = [(1 - ik|\vec{r}_{ij}|) \left(\frac{3(\vec{r}_{ij})_\alpha (\vec{r}_{ij})_\beta - |\vec{r}_{ij}|^2 \delta_{\alpha\beta}}{\varepsilon_m |\vec{r}_{ij}|^5} \right) + k^2 \left(\frac{|\vec{r}_{ij}|^2 \delta_{\alpha\beta} - (\vec{r}_{ij})_\alpha (\vec{r}_{ij})_\beta}{\varepsilon_m |\vec{r}_{ij}|^3} \right)] e^{ik|\vec{r}_{ij}|} \quad (۲)$$

سرانجام با استفاده از رابطه زیر می‌توان سطح مقطع جذب باریکه فرودی توسط ذره را محاسبه کرد [۶]:

$$\sigma = \frac{4\pi\omega}{\epsilon_m^{3/2} c |\vec{E}|^2} \text{Im} \sum_i \vec{P}_i^+ \vec{\alpha}_L^{-1} \vec{P}_i \quad (10)$$

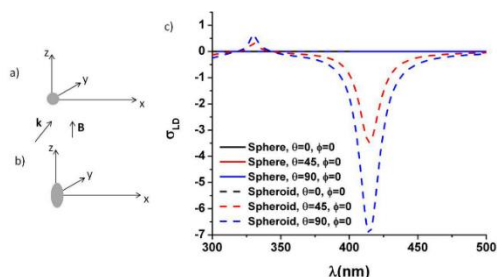
دورنگی خطی در حقیقت تفاوت سطح مقطع جذب نور با دو قطبش خطی عمود بر هم است که طبق رابطه زیر:

$$\sigma_{LD} = \sigma_\theta - \sigma_\phi \quad (11)$$

بدست می‌آید.

۳- نتایج

در این بخش نتایج دورنگی خطی، مربوط به تک ذره کروی و بیضی‌گون نقره به همراه دایمر ذرات کروی و بیضی‌گون، ارائه می‌گردد. ضرایب شکست نقره از مرجع [۷] استخراج شده‌اند. نیم‌محور بزرگ ذرات مورد بررسی 25nm، نیم‌محور کوچک آنها 11.6nm و شعاع کره هم حجم 15nm است. در تمام نمودارهای ارائه شده، طیف دورنگی خطی به مساحت دایره‌ای به شعاع برابر با نیم‌محور بزرگ بیضی‌گون بهنجار شده است. میدان مغناطیسی استاتیک در همه نمودارها به اندازه 8000 Gauss و در جهت محور z در نظر گرفته شده است.



شکل ۱: نمودار دو رنگی خطی تک ذره بیضی‌گون و کروی برای تابش فرودی در جهت مختلف. خطوط پر نمودار دو رنگی تک ذره کروی و خطوط خط چین دو رنگی ذره بیضی‌گون را نشان می‌دهد.

شکل ۱ نشان می‌دهد که یک ذره کروی در حضور میدان مغناطیسی استاتیک که تحت تابش نور قطبیده خطی است از خود دورنگی خطی نشان نمی‌دهد و به سبب تقارن هندسی، چرخش در بوجود آمدن دورنگی خطی تاثیر ندارد. اما ذره بیضی‌گون در همین شرایط از خود دورنگی نشان می‌دهد. نمودارهای مربوط به دورنگی تک

$$L_2 = \left(\frac{a^2 b}{2}\right) \int_0^\infty \frac{dq}{(a^2 + q) f(q)} \quad (5)$$

است. در ضمن $f(q) = (a^2 + q)\sqrt{b^2 + q}$ است. برای اینکه بتوانیم این روابط را برای نانو ذرات استفاده نماییم، از تصحیح زیر استفاده می‌شود:

$$\Gamma = \Gamma_{bulk} + \frac{V_f}{L_{eff}} \quad (6)$$

که در آن L_{eff} طول پویش آزاد میانگین است که از رابطه $L_{eff} = 4V/S$ بدست می‌آید، که در آن V حجم ذره S و مساحت سطح ذره مورد بررسی است [۵]. با استفاده از رابطه (۴) و تقریب تا مرتبه اول ω_c / ω قطبش‌پذیری به صورت رابطه زیر ساده می‌شود:

$$\alpha_j(\omega) = \frac{a^2 b}{3} \begin{pmatrix} \alpha_{jxx} & i\omega_c b_z F_j & -i\omega_c b_y F_j \\ -i\omega_c b_z F_j & \alpha_{jxx} & i\omega_c b_x F_j \\ i\omega_c b_y F_j & -i\omega_c b_x F_j & \alpha_{jxx} \end{pmatrix} \quad (7)$$

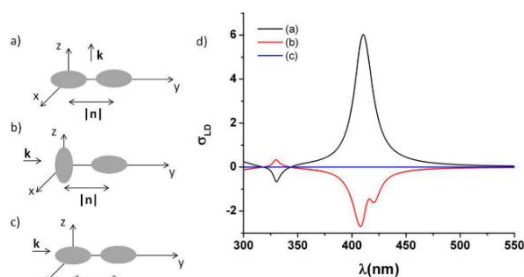
که $\alpha_{jxx} = \frac{\epsilon_{xx} - \epsilon_m}{\epsilon_m + (\epsilon_{xx} - \epsilon_m)L_j}$ ، $j = 1, 2$ و $F_j = \frac{\epsilon_m G}{[\epsilon_m + (\epsilon_{xx} - \epsilon_m)L_j]^2}$ است. به این دلیل که مولفه‌های قطری قطبش‌پذیری در دستگاه متصل به ذره در حضور میدان مغناطیسی خود ماتریس مرتبه ۳ هستند قطبش‌پذیری نهایی طبق رابطه زیر بیان می‌شود:

$$\vec{P} = \epsilon_m \alpha_1 (\vec{E} \cdot \hat{e}_x) \hat{e}_x + \epsilon_m \alpha_1 (\vec{E} \cdot \hat{e}_y) \hat{e}_y + \epsilon_m \alpha_3 (\vec{E} \cdot \hat{e}_z) \hat{e}_z \quad (8)$$

اکنون می‌توانیم با استفاده از ماتریس دوران، قطبش‌پذیری ذره از دستگاه متصل به ذره را با رابطه $\vec{\alpha}_L = R \vec{\alpha}_P R^{-1}$ به دستگاه آزمایشگاه منتقل نماییم، که ماتریس دوران R به صورت زیر می‌باشد:

$$R = \begin{pmatrix} \cos \theta \cos \varphi & -\sin \varphi & \sin \theta \cos \varphi \\ \cos \theta \sin \varphi & \cos \varphi & \sin \theta \sin \varphi \\ -\sin \theta & 0 & \cos \theta \end{pmatrix} \quad (9)$$

و θ و φ به ترتیب زوایای قطبی و سمتی ذره هستند.



شکل ۲: نمودار دورنگی خطی دایمر نانو ذرات بیضی‌گون برای جهت‌گیری‌های مختلف ذرات و جهت‌های تابش مختلف.

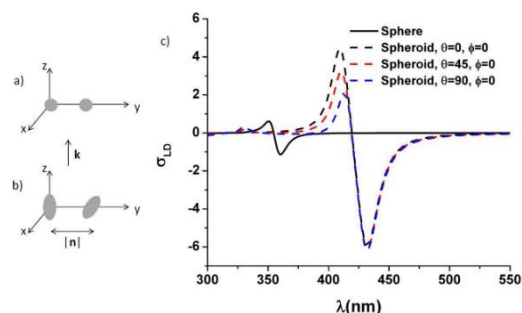
وضعیتی که شعاع بزرگ یک ذره و شعاع کوچک ذره دیگر بر محور دایمر قرار بگیرد و بردار موج موازی محور دایمر بتابد، نمودار دورنگی کمی پیچیده‌تر شده و چهار اکستریم خواهد داشت (شکل b).

به طور خلاصه این مطالعه نشان می‌دهد تک ذره بیضی‌گون به دلیل عدم تقارن هندسی دورنگی خطی دارد. دورنگی خطی تک ذره و دایمر ذرات بیضی‌گون به جهت تابش باریکه فرودی و جهت‌گیری این نانو ذرات نسبت به میدان مغناطیس بستگی دارد.

مراجع

- [1] C. Bohren, *Absorption and Scattering of Light by Small Particles*, p.130-157, Wiley, 1998.
- [2] B. M. Bulheller, A. Rodger, J.D. Hirst, "Circular and linear dichroism of proteins", *Phys.Chem*, Vol. 9, No. 17 pp. 2020-2035, 2007.
- [3] S. Pakdel, M. Miri, "Faraday rotation and circular dichroism spectra of gold and silver nanoparticle aggregates", *Phys. Rev. B.*, Vol. 86, No. 23, pp. 1-10, 2012.
- [4] A. H. Sihvola, "Dielectric polarizability of a sphere with arbitrary anisotropy", *Opt. Lett.*, Vol. 19, No. 7, pp. 430-432, 1994.
- [5] A. Coronado, G. C. Schatz, "Surface plasmon broadening for arbitrary shape nanoparticles: A geometrical probability approach", *J. Chem. Phys.*, Vol. 119, No. 7, pp. 3926-3924, 2003.
- [6] A. Mohammad, M. Miri, "Magnetic linear and circular dichroism of planar sets of hollow silver nanoparticles: engineering the spectra by hollow size", *JOSA B.*, Vol. 33, Issue 4, pp. 711-719, 2016.
- [7] P. B. Johnson, R. W. Christy, "Optical Constants of the Noble Metals", *Phys. Rev. B.*, Vol. 6, No. 12, pp. 4370-4379, 1972.

ذره بیضی‌گون شامل دو اکستریم مثبت و منفی است. با تغییر زاویه بردار موج نور تابشی، محل دو اکستریم ثابت باقی می‌ماند اما دامنه آن تغییر می‌یابد، به طوریکه در وضعیت تابش عمود یا $\vec{k} \cdot \vec{B} = 0$ بیشترین دامنه را داریم و با کاهش زاویه تابش، دامنه نمودار دورنگی نیز کاهش می‌یابد. در زاویه صفر (تابش موازی قطر بزرگ بیضی‌گون) دورنگی از بین می‌رود.



شکل ۳: دورنگی خطی دایمر بیضی‌گون و کروی برای چرخش‌های مختلف ذره دوم بر روی محور y.

شکل ۲ نشان می‌دهد که دورنگی برای یک دایمر ذرات کروی در طول موج‌های کوتاه‌تری نسبت به دایمر ذرات بیضی‌گون رخ می‌دهد. نمودار دورنگی خطی برای ذرات بیضی‌گون، دو اکستریم مثبت و منفی دارد. با چرخش یکی از ذرات دایمر به روی محور y ، دامنه برای بخش منفی نمودار و محل کمینه تقریباً ثابت می‌ماند اما بخش مثبت نمودار با افزایش زاویه از صفر تا 90° کاهش دامنه می‌یابد و محل بیشینه نیز اندکی به سمت طول موج‌های بلندتر جابجا می‌شود. شکل ۳ نشان می‌دهد که وقتی شعاع بزرگ هر دو ذره بیضی‌گون روی محور دایمر بوده و بردار موج موازی محور دایمر باشد، دورنگی خطی مشاهده نمی‌شود (شکل c). اما اگر در همین وضعیت دایمر، بردار موج عمود بر محور دایمر باشد، شاهد دورنگی با دو اکستریم مثبت و منفی خواهیم بود (شکل a).