

بررسی دینامیک غیرخطی زنجیره خطی از ذرات نانو فلزی در اندرکنش با لیزر: حالت انتشار عمود

ناصر سپهری جوان، آصف خیراندیش، حسین محمدزاده و افسون فرهومند

دانشگاه محقق اردبیلی، دانشکده علوم، گروه فیزیک

چکیده - مطالعه دینامیک اندرکنش میدان‌های شدید الکترومغناطیسی با نانوذرات فلزی یکی از علاقمندی‌های بزرگ در برخی پدیده‌های غیرخطی در نانواپتیک و پلاسمونیک می‌باشد. این پدیده‌ها شامل تولید هماهنگ‌ها، نانو-همگرایی، خودهمگرایی، مدهای غیرخطی و نانو-موج‌بری می‌باشد. با استفاده از یک مدل درود نسبیتی تعمیم یافته ما معادلات حرکت زنجیره خطی از نانوذرات اندرکنشی با یک لیزر قطبیده خطی منتشر شونده عمود بر محور تقارن آرایه را به صورت تحلیلی بررسی کرده‌ایم. اندرکنش متقابل هر ذره با دو همسایه نزدیک در رژیم اندرکنش دوقطبی-دوقطبی در نظر گرفته شده است. با استفاده از یک رهیافت اختلالی معادلات حرکت هماهنگ‌های اول، دوم و سوم میدان‌های الکترومغناطیسی حل شده و نشان داده شده است که فاصله بین ذرات دارای نقش اساسی در دینامیک غیرخطی است.

کلید واژه - آثار غیرخطی، اندرکنش دوقطبی-دوقطبی، مدل درود، لیزر، نانوذرات

Investigation of nonlinear dynamics of linear chain of metallic nanoparticles in the interaction with a laser: Perpendicular propagation

Nasser Sepehri Javan, Asef Kheirandish, Hosein Mohammadzadeh and Afsoon Farhoomand

Department of Physics, Faculty of Science, University of Mohaghegh Ardabili, Ardabil, Iran

Abstract- Study of the dynamics of the interaction of intense electromagnetic fields with metallic nanoparticles is a great interest of some applied nonlinear phenomena in nano-optics and plasmonic. These phenomena include harmonics generation, nano-focusing, self-focusing, nonlinear modes and nano-waveguiding. Using a relativistic modified Drude model, we analytically solve the motion equations of spherical nanoparticles linear chain interacting with a linearly-polarized laser propagating perpendicular to the symmetry axis of the array. Mutual interaction of each particle with two adjacent neighbors has been considered in the dipole-dipole interaction regime. By means of a perturbative approach, the motion equations of the first, second and third harmonics of electromagnetic fields are solved and it is shown that the interparticle separation of particles has a clue role in the nonlinear dynamics.

Keywords: Diopole-diopole interaction, Drude-model, Laser, Nanoparticles, Nonlinear effects

۱- مقدمه

معادله‌ی اندرکنش نسبیتی میدان‌های الکترومغناطیسی لیزر با ابر الکترونی n امین ذره به صورت زیر است:

$$\frac{d(\gamma_n \mathbf{v}_n)}{dt} + \Gamma \mathbf{v}_n + \frac{\omega_p^2 \mathbf{r}_n}{3\gamma_n} = -\frac{e}{m} [\mathbf{E}(\mathbf{r}_{0n} + \mathbf{r}_n) + \mathbf{v}_n \times \mathbf{B}(\mathbf{r}_{0n} + \mathbf{r}_n)] \quad (3)$$

که γ_n فاکتور نسبیتی لورنتس، $\mathbf{v}_n$ سرعت، ω_p فرکانس پلاسمایی، $\mathbf{r}_n$ جابجایی ابر الکترونی از حالت تعادل، m جرم الکترون، Γ فاکتور میرایی مربوط به پراکندگی الکترون و e بار الکترون است. حال از روش اختلالی برای حل معادله‌ی حرکت (۳) استفاده می‌کنیم.

۱-۲- معادلات اختلال مرتبه اول

با در نظر گرفتن اندرکنش هر ذره با دو ذره همسایه نزدیک خود ($n \pm 1$)، در تقریب اندرکنش دوقطبی-دوقطبی با استفاده از رابطه (۳) معادله حرکت مرتبه اول به شکل زیر حاصل می‌شود:

$$\frac{d^2 y_n^{(1)}}{dt^2} + \Gamma \frac{dy_n^{(1)}}{dt} + \frac{\omega_p^2}{3} y_n^{(1)} = -\frac{e\hat{E}}{2m} (e^{ikx-i\omega t} + c.c.) - \frac{Ze^2}{4\pi\epsilon_0 m d^3} (y_{n+1}^{(1)} + y_{n-1}^{(1)}) \quad (4)$$

که در آن $Z = 4\pi\epsilon_0^3 n_0 / 3$ تعداد الکترون‌های هر نانوذره می‌باشد. با مختصر آشنایی از ریاضیات گسسته جواب زیر برای معادله بالا پیشنهاد می‌شود:

$$y_n^{(1)} = (b_1 S_1^n + b_2 S_2^n + b_0) e^{i(kx - \omega t)} + c.c. \quad (5)$$

ذرات ابتدایی و انتهایی ما در این زنجیره دارای فقط یک همسایه هستند، با استفاده از این شرط مرزی b_1 و b_2 بدست می‌آید که با توجه به فوق العاده طولانی بودن این ضرایب از آوردن آنها صرف نظر می‌شود. ضرایب S_1 ، S_2 و b_0 از روابط زیر حاصل می‌شوند:

$$S_{1,2} = (1 \pm \sqrt{1 - 4a_1^2}) / 2a_1, \quad b_0 = y_0 / (1 - 2a_1) \quad (6)$$

که a_1 ، y_0 به صورت زیر تعریف می‌شوند:

$$y_0 = \frac{e\hat{E}}{m(\omega^2 + i\omega\Gamma - \omega_p^2/3)}, \quad a_1 = E_d / \hat{E} \quad (7)$$

و $E_d = Ze y_0 / 4\pi\epsilon_0 d^3$ است.

نانو ذرات فلزی به واسطه پذیرفتاری غیرخطی بالایی که در نواحی فرکانسی نزدیک تشدید پلاسمون دارند، همواره مورد توجه فیزیکدان‌های نظری و عملی بوده‌اند [۱-۲]. بررسی نحوه تغییرات میدان‌های نزدیک و دور ناشی از اندرکنش نانوذرات با لیزر دارای اهمیت کاربردی در فیزیک، نانوپتیک، پلاسمونیک و نیز بیوفیزیک است [۳-۵]. در این مقاله دینامیک اندرکنش یک پالس لیزری پرشدت با قطبش خطی با آرایه‌ای خطی و منظم از نانو ذرات فلزی را در نظر می‌گیریم. برای اولین بار به صورت تحلیلی با لحاظ کردن اندرکنش همسایه‌های مجاور، نحوه حرکت غیرخطی ابر الکترونی ذرات با استفاده از حل معادلات دیفرانسیل جفت شده برای اندرکنش‌های مرتبه اول، دوم و سوم حاصل شده است. نشان داده شده است که جفت‌شدگی ذرات سبب جابه‌جایی نواحی تشدید فرکانسی در مجموعه شده و فاصله ذرات از هم تأثیر به سزایی در دینامیک مسئله دارد. نتایج حاصله می‌تواند کاربردهای بسیاری در بررسی تحلیلی آثار غیرخطی مانند تولید هماهنگ و یا انتقال انرژی از موج‌برهای نانوذره‌ای با استفاده از میدان نزدیک تشدید پلاسمونی زنجیره داشته باشد.

۲- معادلات اساسی

انتشار امواج الکترومغناطیسی در یک شبکه یک بعدی تناوبی، از نانوذرات یکسان با شعاع r_c و فاصله‌ی d را در نظر می‌گیریم. فرض شده است که یون‌ها تحت اندرکنش با امواج الکترومغناطیسی فرکانس بالا ساکن هستند و تنها ابر الکترونی کروی هر نانوذره به این فرکانس عکس‌العمل نشان می‌دهد. همچنین فرض می‌کنیم که راستای انتشار موج عمود بر راستای چینش خطی ذرات می‌باشد. در حالت تعادل چگالی ابر الکترونی ثابت n_0 است. میدان الکتریکی پرتو لیزری

$$\mathbf{E}_L = \frac{1}{2} \hat{E} e^{i(kx - \omega t)} \hat{\mathbf{e}}_y + c.c., \quad (1)$$

است، که k ، ω ، $\hat{E}$ به ترتیب عدد موج، فرکانس و دامنه لیزر هستند. از معادله فارادی میدان مغناطیسی لیزر به صورت زیر حاصل می‌شود:

$$\mathbf{B}_L = \frac{k}{2\omega} \hat{E} e^{i(kx - \omega t)} \hat{\mathbf{e}}_z + c.c.. \quad (2)$$

۲-۲- معادلات اختلال مرتبه دوم

جمله $\mathbf{V} \times \mathbf{B}$ در رابطه (۳) سبب ایجاد نوسانات هماهنگ دوم در راستای انتشار موج می‌شود که در معادله دیفرانسیل زیر صدق می‌کند:

$$\frac{d\mathbf{v}_n^{(2)}}{dt} + \Gamma \mathbf{v}_n^{(2)} + \frac{\omega_p^2}{3} x_n^{(2)} = \frac{-Ze^2}{4\pi m \epsilon_0 d^3} (x_{n+1}^{(2)} + x_{n-1}^{(2)}) + \frac{ike\hat{E}\tilde{y}_n^{(1)}}{4m} (e^{2i(kx-\omega t)} + c.c.) \quad (۸)$$

با حل معادله بالا خواهیم داشت:

$$x_n^{(2)} = \frac{e^{2i(kx-\omega t)}}{2i} (d_1 S_1'^n + d_2 S_2'^n + f_1 S_1^n + f_2 S_2^n + f_3) + c.c. \quad (۹)$$

که از شرایط مرزی می‌توانیم d_1 و d_2 را تعیین کنیم که به واسطه طولانی بودن از آوردن آنها نیز صرف نظر می‌شود. ضرایب f_1 ، f_2 و f_3 برابر هستند با:

$$f_{1,2} = \frac{e\hat{E}kb_{1,2}}{2m(4\omega^2 + 2i\omega\Gamma - \omega_p^2/3)(1 - c_1 S_{1,2} - c_1 S_{1,2}^{-1})},$$

$$f_3 = \frac{e\hat{E}kb_0}{2m(1 - 2c_1)(4\omega^2 + 2i\omega\Gamma - \omega_p^2/3)}, \quad (۱۰)$$

را هم به صورت زیر تعریف کرده‌ایم:

$$c_1 = Ze^2 / 4\pi \epsilon_0 m d^3 (4\omega^2 + 2i\omega\Gamma - \omega_p^2/3),$$

$$S_{1,2}' = (1 \pm \sqrt{1 - 4c_1^2}) / 2c_1. \quad (۱۱)$$

۲-۳- معادلات اختلال مرتبه سوم

برای جابه‌جایی مرتبه سوم، از رابطه (۳) خواهیم داشت:

$$\frac{d}{dt} [\mathbf{v}^{(3)} + \gamma^{(2)} \mathbf{v}^{(1)}] + \Gamma \mathbf{v}^{(3)} + \frac{\omega_p^2}{3} [\mathbf{r}^{(3)} + (\gamma^{-1})^{(2)} \mathbf{r}^{(1)}] = -\frac{e}{m} \left[\sum_{j=n\pm 1} \mathbf{E}_j^{(3)} - \mathbf{v}^{(2)} \times \mathbf{B}^{(1)} - (\mathbf{r}^{(2)} \cdot \nabla) \mathbf{E}^{(1)} \right] \quad (۱۲)$$

با حل این معادله به روش ماتریسی، جابه‌جایی مرتبه سوم برای هماهنگ اول و سوم به صورت زیر حاصل می‌شود:

$$\mathbf{X}_\omega = -G^{-1} \mathbf{g}, \quad \mathbf{X}_{3\omega} = -H^{-1} \mathbf{h} \quad (۱۳)$$

G, H ماتریس‌های $N \times N$ سه قطری هستند که عناصر قطر اصلی آن -1 است و عناصر قطر بالا و پایین قطر اصلی برای ماتریس G برابر g_1 و برای ماتریس H برابر h_1 است.

$\mathbf{X}_{3\omega}, \mathbf{X}_\omega, \mathbf{g}, \mathbf{h}$ ماتریس‌های ستونی $N \times 1$ هستند که عناصر $\mathbf{X}_\omega$ عبارتند از $\tilde{x}_{1,\omega}^{(3)}, \dots, \tilde{x}_{N,\omega}^{(3)}$ و برای $\mathbf{X}_{3\omega}$ داریم: $\tilde{x}_{1,3\omega}^{(3)}, \dots, \tilde{x}_{N,3\omega}^{(3)}$.

عناصر ماتریس $\mathbf{g}$ را به صورت $g_{0n}^{(3)}$ تعریف می‌کنیم:

$$g_{0n}^{(3)} = \frac{-\omega^2}{8c^2 \omega_1^2} [3\omega^2 + \frac{\omega_p^2}{3}] |\tilde{y}_n^{(1)}|^2 \tilde{y}_n^{(1)} \quad (۱۴)$$

$$+ \frac{e\hat{E}k\tilde{x}_n^{(2)}}{2m\omega_1^2} - \frac{kZe^2}{8\pi\epsilon_0 m d^3 \omega_1^2} \tilde{x}_n^{(2)} (\tilde{y}_{n+1}^{(1)} + \tilde{y}_{n-1}^{(1)})^*$$

$$g_1 = \frac{Ze^2}{4\pi\epsilon_0 m d^3 \omega_1^2}, \omega_1^2 = \omega^2 + i\omega\Gamma - \omega_p^2/3 \quad (۱۵)$$

همچنین برای عناصر ماتریس $\mathbf{h}$ داریم:

$$h_{0n}^{(3)} = \frac{\omega^2}{8c^2 \omega_3^2} \left\{ 3\omega^2 + \frac{\omega_p^2}{3} \right\} (\tilde{y}_n^{(1)})^3 \quad (۱۶)$$

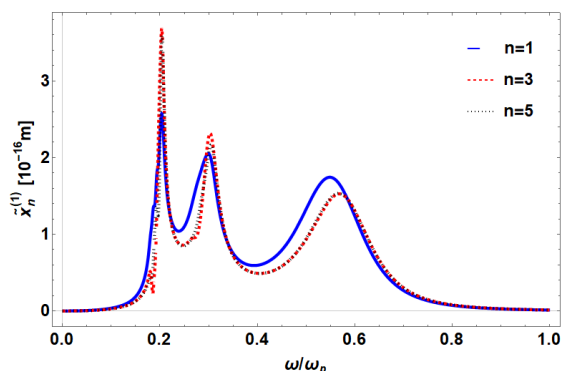
$$+ \frac{3e\hat{E}k\tilde{x}_n^{(2)}}{2m\omega_3^2} + \frac{Ze^2 k\tilde{x}_n^{(2)}}{4\pi\epsilon_0 m d^3 \omega_3^2} (\tilde{y}_{n+1}^{(1)} + \tilde{y}_{n-1}^{(1)})$$

$$h_1 = \frac{Ze^2}{4\pi\epsilon_0 m d^3 \omega_3^2}, \omega_3^2 = 9\omega^2 + 3i\omega\Gamma - \frac{\omega_p^2}{3} \quad (۱۷)$$

۳- بحث عددی

مطالعه عددی برای لیزری با شدت $I = 10^{14} \text{ W/cm}^2$ و زنجیره خطی شامل ۱۰ عدد نانوذره مس با شعاع $r_c = 25 \text{ nm}$ انجام گرفته است. در شکل (۱) تغییرات دامنه جابه‌جایی مرتبه اول نسبت به فرکانس بی‌بعد شده با فرکانس پلاسمایی برای ذره پنجم به ازای سه فاصله بین ذره‌ای $d = 2.5r_c, 3r_c, 4r_c$ آورده شده است. ملاحظه می‌شود که بیشینه مقدار جابه‌جایی حول و حوش فرکانس تشدید پلاسمونی ($\omega/\omega_p = 0.57$) حاصل می‌شود. با کاهش فاصله ذرات از یکدیگر، اندرکنش ذرات بیشتر شده و سبب کمتر شدن جابه‌جایی ابرالکترونی می‌شود. همچنین با کاهش فاصله ذرات محل فرکانس تشدید پلاسمون به سمت فرکانس‌های بالا جابه‌جا می‌شود و به عبارتی کاهش فاصله ذرات سبب انتقال به آبی (Blue Shift) تشدید پلاسمون می‌شود. مرتبه مقداری جابه‌جایی‌ها از مرتبه آنگستروم می‌باشد. در شکل (۲) نحوه تغییرات دامنه جابه‌جایی ابرالکترونی مرتبه دوم برای ذرات موجود در نقاط مختلف آرایه، بر حسب فرکانس بی‌بعد شده با فرکانس پلاسمایی با فاصله جدایی $2.5r_c$ است آورده شده است. ملاحظه می‌شود که علاوه بر وجود تشدید در اطراف فرکانس اصلی پلاسمونی $\omega = \omega_p/\sqrt{3}$ ، تشدید دیگری نیز هنگامی که هارمونیک دوم

قله‌ها و همین طور جابه‌جایی فرکانس تشدید با مرتبه قرارگیری ذرات وجود ندارد.



شکل ۳: دامنه جابه‌جایی مرتبه سوم به ازای $N = 10$ ، $d = 2.5r_c$ و $n = 1, 3, 5$ ، $I = 10^{14} \text{ W/cm}^2$.

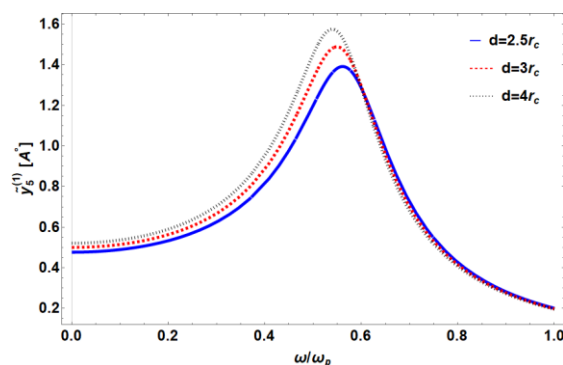
۴- نتیجه‌گیری

مسئله دینامیک غیرخطی آرایه‌ای خطی از نانوذرات کروی در اندرکنش لیزر بررسی شد. آنالیز عددی برای جابه‌جایی‌های غیرخطی تا مرتبه سوم برای یک مجموعه شامل ده ذره مس به شعاع ۲۵ نانومتر انجام گرفت. جابه‌جایی ذرات مختلف در فرکانس‌های مختلف مورد بررسی واقع شد. همچنین رابطه بین نحوه جابه‌جایی قله تشدید پلاسمون با تغییرات فاصله بین ذرات برای جابه‌جایی مرتبه اول بررسی شد. ملاحظه شد که کاهش فاصله ذرات منجر به کاهش دامنه تشدید و نیز انتقال به آبی فرکانس تشدید می‌شود.

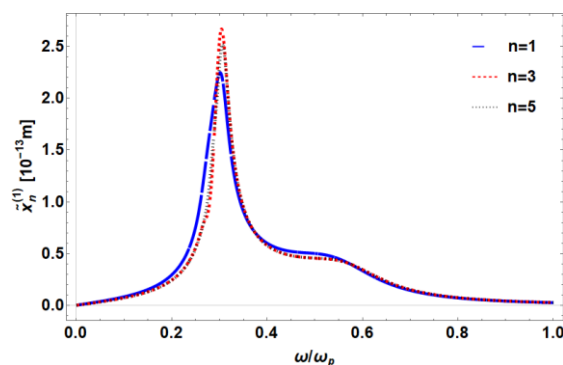
مراجع

- [1] P. A. Franken, A. E. Hill, C. W. Peters; "Generation of Optical Harmonics"; Phys. Rev. Lett. 7 (1961) 118.
- [2] N. H. Burnett, H. A. Baldis, M. C. Richardson, G. D. Enright; "Harmonic generation in CO₂ laser target interaction"; App Phys Lett 31 (1977) 172-174.
- [3] J. Reintjes; "Third-harmonic conversion of XeCl-laser radiation"; Opt Lett 4 (1979) 242-244.
- [4] J. Wildenauer; "Generation of the ninth, eleventh, and fifteenth harmonics of iodine laser radiation"; J Appl Phys 62 (1987) 41.
- [5] M. Lippitz, M. A. Dijk, M. Orrit; "Third-Harmonic Generation from Single Gold Nanoparticles"; Nano Lett 5 (2005) 799-802.

در حالت تشدید با نوسانات پلاسmoni $\omega = \omega_p / 2\sqrt{3}$ است وجود دارد. در تمامی موارد، تمامی جابه‌جایی‌ها از مرتبه مقداری ده هزارم نانومتر می‌باشد. با توجه به تقارن موجود جابه‌جایی ذره اول با ذره آخر، ذره دوم با ذره ما قبل آخر و به همین ترتیب هر ذره‌ای با ذره تقارن آینه‌ایش نسبت به مرکز زنجیره برابر است. ملاحظه می‌شود که نظم و قاعده خاصی در مورد ارتفاع بیشینه جابه‌جایی هر ذره در تشدید پلاسمون با نقطه قرارگیری ذره وجود ندارد.



شکل ۴: دامنه جابه‌جایی مرتبه اول به ازای $N = 10$ ، $d = 2.5r_c, 3r_c, 4r_c$ و $I = 10^{14} \text{ W/cm}^2$.



شکل ۵: دامنه جابه‌جایی مرتبه دوم به ازای $N = 10$ ، $d = 2.5r_c$ و $n = 1, 3, 5$ ، $I = 10^{14} \text{ W/cm}^2$.

شکل (۳) نحوه تغییرات دامنه جابه‌جایی ابر الکترونی مرتبه سوم مربوط به هماهنگ سوم برای ذرات در جایگاه‌های مختلف آرایه، بر حسب فرکانس بی‌بعد شده با فرکانس پلاسما برای حالت مشابه قبلی آورده شده‌است. علاوه بر وجود تشدیدهایی که در حالت هارمونیک دوم داشتیم، تشدید بزرگ دیگری نیز هنگامی که هارمونیک سوم در حالت تشدید با نوسانات پلاسmoni $\omega = \omega_p / 3\sqrt{3}$ است وجود دارد. همچنین مشاهده می‌شود که این جابه‌جایی‌ها در مقایسه با جابه‌جایی‌های مرتبه اول و دوم کوچک و از مرتبه 10^{-6} می‌باشد. اینجا نیز نظم و قاعده خاصی در مورد ارتفاع