



بیست و ششمین کنفرانس اپتیک و فوتونیک ایران و دوازدهمین کنفرانس مهندسی و فناوری فوتونیک ایران، دانشگاه خوارزمی، تهران، ایران.  
۱۶-۱۵ بهمن ۱۳۹۸



## تولید هارمونیک مرتبه بالا به وسیله نانوذرات هسته/پوسته فلزی بیضوی شکل جفت شده

زینب آمیز، مسعود محبی

دانشگاه ولی عصر (عج) رفسنجان، [zeinab.amiz17@gmail.com](mailto:zeinab.amiz17@gmail.com)

دانشگاه ولی عصر (عج) رفسنجان، [m.mohebbi@vru.ac.ir](mailto:m.mohebbi@vru.ac.ir)

چکیده- ما تولید هارمونیک مرتبه بالا ناشی از برهم کنش گاز آرگون با میدان الکتریکی تقویت شده‌ی ناهمگن ناشی از پلاسمون سطحی جایگزیده را بررسی می‌کنیم. این میدان‌ها زمانی که یک نانوذره جفت شده‌ی طلا با روکش نقره در معرض تابش یک پالس لیزری کوتاه مدت قرار می‌گیرد تولید می‌شوند. نتایج نشان می‌دهد که با به کار بردن پوشش نازک نقره اطراف نانو ساختار، تقویت میدان در گاف نانوساختار به حدی است که می‌توان به تولید هارمونیک مرتبه بالاتر دست یافت. هم چنین تقویت میدان قابل توجه در اطراف نانوذره‌ی فلزی به ما اجازه‌ی استفاده از شدت‌های فرودی پایین تر از آزمایش‌های معمول HHG را می‌دهد. در نتیجه از تخریب گرمایی نانوذره‌ها می‌تواند جلوگیری شود. بنابراین می‌توان از این طرح برای تولید پالس‌های XUV فوق کوتاه با آهنگ تکرار MHz برای دفعات زیاد استفاده کرد.

کلید واژه: تولید هارمونیک مرتبه بالا، نانوذرات بیضوی شکل، میدان الکتریکی تقویت یافته

### High order harmonic generation using a coupled metal ellipsoidal core/shell nanoparticles

Zeinab Amiz, Masoud Mohebbi

Vali-e-Asr University of Rafsanjan, [zeinab.amiz17@gmail.com](mailto:zeinab.amiz17@gmail.com)

Vali-e-Asr University of Rafsanjan, [m.mohebbi@vru.ac.ir](mailto:m.mohebbi@vru.ac.ir)

**Abstract-** We investigate high-order harmonic generation (HHG) resulting from the interaction of argon gases with enhanced inhomogeneous electric field based on localized surface plasmon. These fields produced when an Ag coated around Au coupled ellipsoidal nanoparticles are illuminated by a short laser pulse. The results show that by applying a thin Ag coating around the nanoparticles, the field strength in the nanoparticles gap is such that the higher order harmonic generation can be achieved. Also, the significant field enhancement in argon in the vicinity of metal nanoparticles allows us to use much lower incident intensities than in typical HHG experiments. As a result it can be prevented nanoparticles from thermal destruction. Thus one can be apply this scheme to produce ultrashort XUV pulses with MHz repetition rates for many times.

**Keywords:** High-order Harmonic Generation, Ellipsoidal Nanoparticles, Enhanced electric field

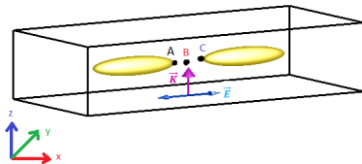
## مقدمه

تولید هارمونیک‌های مرتبه بالا پدیده‌ای غیرخطی می‌باشد که در نتیجه‌ی برهم‌کنش یک پالس لیزری پرشدت با یک سیستمی از اتم‌های گازی یا مولکول‌ها در فاز گازی و یا جامد حاصل می‌شود. تابش حاصل از این برهم‌کنش از لحاظ طیفی شامل مولفه‌های فرکانسی می‌باشد که مضربی از فرکانس باریکه‌ی لیزری فرودی می‌باشد [۱ و ۲]. باریکه گسیلی این منبع لیزری، محدوده‌ی وسیعی از تابش، از مادون قرمز تا فرابنفش دور (حتی اشعه X نرم) را در بر می‌گیرد. از طرف دیگر به علت خاصیت تقویت‌کنندگی نانوساختارهای فلزی [۳]، مطالعات زیادی در مورد تولید هارمونیک‌های مرتبه بالا با استفاده از باریکه‌های لیزری کم شدت شده است [۴-۷]. از جمله‌ی این پژوهش‌ها استفاده از کامپوزیتی که از نانوساختارهای بیضوی شکل و اتم‌های آرگون تشکیل شده است که گروه یانگ [۶] و هوساکو [۷] به بررسی آن پرداخته‌اند. گروه یانگ موفق شدند با استفاده از جفت نانوبیضوی که تحت تابش پالس لیزری با قله شدت  $10^{11} \text{ Wcm}^{-2}$  قرار گرفته بود، به تولید هارمونیک‌های مرتبه بالا با مرتبه‌ی فرکانس قطع ۵۰ دست یابند. گروه هوساکو با استفاده از نانوساختارهای بیضوی شکل منفرد با توزیع فضایی متناوب توانستند به تولید هارمونیک‌های مرتبه بالا با مرتبه‌ی فرکانس قطع ۵۸ برسند. در این جا بر مبنای کارهای انجام شده در این زمینه [۴-۷] قصد داریم از نانوذرات بیضوی شکل که روکشی بر روی آن قرار داده شده است استفاده کنیم. استفاده از روکش فلزی به‌عنوان پارامتری برای کنترل بیشتر خواص اپتیکی نانوبیضوی‌ها می‌باشد. با متمرکز شدن باریکه یک لیزر تجاری با قله شدت  $10^{11} \text{ Wcm}^{-2}$  بر روی این نانوساختار گاز اتمی آرگون به این نانوساختار وارد می‌شود. افزایش نانوپلاسمونیک‌ی در ناحیه‌ی شکاف بین بیضوی‌های متحرک موجب می‌شود که حداقل شدت میدان به‌طور محلی از  $10^{14} \text{ Wcm}^{-2} \times 8,5$  تجاوز کند. در نتیجه هارمونیک‌های مرتبه بالای پراورژی‌تری نسبت به کار یانگ و هوساکو می‌تواند به‌وسیله این اتم‌ها تولید شود. اگرچه انتظار می‌رود که افزایش

نانوپلاسمونیک‌ی برای نانوساختارهای بیضوی بیشتر از نانوساختارهای پاپیونی باشد [۴]، اما دلیل انتخاب نانوساختارهای بیضوی در این کار در مقایسه با نانوساختارهای پاپیونی این است که بیضوی‌ها را می‌توان با استفاده از سنتز شیمیایی در مقادیر زیاد و همچنین می‌توان آن‌ها را نیز در آرایه‌های بزرگتر بر روی سطوح تولید کرد.

## فرض‌های شبیه‌سازی

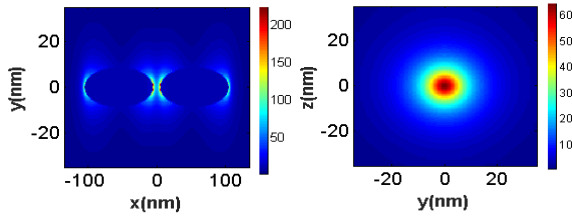
نانوساختار مورد بررسی از دو بیضوی با سطح مقطع دایره‌ای از جنس طلا که با روکش از جنس نقره تشکیل شده است. فاصله‌ی بین نوک دو بیضوی (گاف) ۱۰ نانومتر می‌باشد. این نانوساختار درون جعبه‌ای با ابعاد  $300 \times 100 \times 75$  نانومتر از جنس خلأ قرار دارند (مطابق شکل ۱). میدان الکتریکی فرودی در تمام مراحل شبیه‌سازی از یک پالس فرودی قطبیده شده خطی در راستای محور x تشکیل شده است با مدت تپش ۱۰ فمتوثانیه (بازه‌ی طول موجی ۷۵۰ تا ۸۵۰ نانومتر) بر ساختار اعمال می‌گردد. کلیه شبیه‌سازی‌های انجام شده بر مبنای حل عددی معادلات ماکسول با استفاده



شکل ۱: طرحواره سه بعدی از ساختار متشکل از دو نانوبیضوی طلا که تحت تابش پالس فرودی در جهت عمودی z با قطبش خطی در امتداد محور x قرار گرفته است.

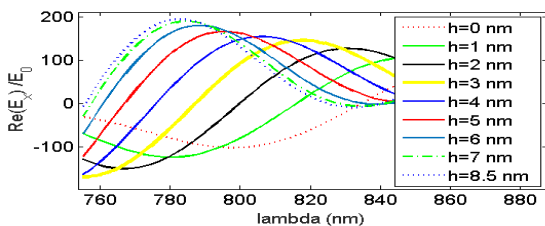
از روش تفاضل محدود در حوزه زمان می‌باشد [۸]. دقت مش در تمام مراحل شبیه‌سازی ۰/۵ نانومتر می‌باشد. اگر مشابه با آزمایش کیم [۴] گاز آرگون را به فضای خالی بین دو نانوبیضوی پمپ نماییم می‌توان به علت تقویت زیاد میدان در فضای گاف به بررسی پاسخ غیرخطی این اتم یعنی تولید هارمونیک مرتبه بالا پرداخت. دینامیک حرکت یک الکترون که در یک میدان الکتریکی (تقویت شده درون

چنین بیشترین تقویت میدان پراکنده شده با مقدار ۱۶۰ در حوالی طول موج ۸۰۰ نانومتر در ضخامت ۵ نانومتر می‌باشد.



شکل ۲: توزیع دوبعدی اندازه‌ی میدان الکتریکی تقویت شده اطراف نانوساختار جنس طلا (بدون روکش) در صفحه‌های  $xy$  و  $yz$  که از مرکز گاف نانوساختار عبور می‌کنند.

همان‌طور که مشاهده می‌شود با افزایش ضخامت پوسته، طول موج تشدید پلاسمونی به سمت مقادیر کوتاه‌تر جابه‌جا



شکل ۳: تقویت مولفه  $E_x$  میدان الکتریکی برای نانوساختار بیضوی طلا با ضخامت‌های متفاوت روکش نقره از ۰ تا ۸٫۵ نانومتر در بازه طول موجی ۷۵۰-۸۵۰ نانومتر در نقطه A.

می‌شود. این به علت ایجاد بارهای الکتریکی در بیرون و داخل پوسته (روکش نقره) و هسته است که با یکدیگر با انرژی بالاتر (به علت عدم تقارن توزیع بار ایجاد شده) برهم‌کنش می‌کنند. مقدار تقویت نیز می‌تواند تابعی از چگالی بارهای متناظر باشد.

### تولید هارمونیک مرتبه بالا با استفاده از تزریق گاز آرگون در گاف نانوساختار

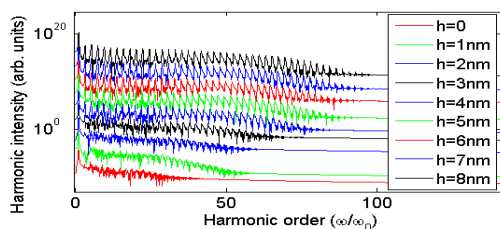
سرانجام با قرار دادن اتم آرگون در وسط گاف بر روی وسط خط واصل بین دو نوک نانوساختار می‌توان به بررسی پاسخ غیرخطی این اتم به میدان تقویت شده پرداخت. اگر شدت میدان فرودی مشابه با آزمایش کیم [۴]  $10^{11} \text{ Wcm}^{-2}$  در

گاف بر روی خط مرکز تا مرکز دو نانو بیضوی) با قطبش خطی حرکت می‌کند را می‌توان با تقریب خوبی از حل معادله شرودینگر وابسته به زمان یک بعدی به دست آورد. بر این مبنا می‌توان شدت هارمونیک‌های مرتبه بالای گسیل شده را محاسبه کرد [۵ و ۶].

### تقویت میدان در نانوساختار روکش‌دار

ابتدا به بررسی پاسخ نوری نانوساختار به میدان لیزری می‌پردازیم. این نانوبیضوی‌های منفرد از جنس طلا به ترتیب با شعاع اصلی و فرعی ۵۰ و ۸٫۵ نانومتر انتخاب شده است. در شکل ۲ توزیع دوبعدی اندازه میدان الکتریکی پراکنده شده بهنجار (نسبت اندازه میدان الکتریکی پراکنده شده به قله میدان فرودی) در اطراف نانوساختار طلا (بدون روکش نقره) در صفحه‌های  $xy$  ( $z=0$ ) و  $yz$  ( $x=0$ ) که از مرکز گاف نانوساختار عبور می‌کنند نشان داده شده است. توزیع دوبعدی میدان به علت سطح مقطع دایروی در صفحه  $xy$  ( $z=0$ ) و  $xz$  ( $y=0$ ) یکسان می‌باشد. مطابق شکل ۲ بیشترین مقدار میدان پراکنده شده (تقویت ۲۲۰ برابری) در سطح نانوبیضوی طلا به ویژه نقاطی که در راستای محور  $x$  قرار دارند مشاهده می‌شود (یعنی نوک بیضوی). هم‌چنین حداقل تقویت در وسط گاف حدود ۶۵ برابر می‌باشد. مکانیسم تقویت در نانوساختار بیضوی بر اساس تشدید پلاسمونیک می‌تواند توضیح داده شود [۹ و ۴]. در گام بعدی اقدام به اضافه کردن پوسته‌ای از جنس نقره به ضخامت  $h$  حول هسته طلا با شعاع اصلی و فرعی  $(50-h)$  و  $(8.5-h)$  نانومتر می‌نماییم. در شکل ۳ مولفه  $E_x$  طیفی میدان پراکنده شده بهنجار در محل نقطه A (یک نانومتر بیرون از نوک بیضوی نشان داده شده در شکل ۱ برای ضخامت پوسته‌ی ۰ تا ۸٫۵ نانومتر نشان داده شده است. طبق شکل بیشترین تقویت میدان پراکنده شده با مقدار ۱۹۶ در طول موج ۷۸۴ نانومتر در ضخامت ۸٫۵ نانومتر می‌باشد. هم

می توان منبع لیزری طول موج کوتاه با قابلیت استفاده طولانی مدت و پایدار در اختیار داشت.



شکل ۴: طیف هارمونیک نانوساختاری با ضخامت های پوسته ی مختلف.

### مرجع ها

- [1] P. Corkum, K. Ferenc, "Attosecond science", Nat. phys., Vol. 3, No. 6, pp. 381, 2007.
- [2] M. Lewenstein, et al, "Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields", Phys. Rev. A., Vol. 49, No. 3, pp. 2117, 1994.
- [3] M. Alsawafta, W. Mamoun, "Plasmonic modes and optical properties of gold and silver ellipsoidal nanoparticles by the discrete dipole approximation", J. Nano, Vol. 2012, pp. 33, 2012.
- [4] S. Kim, et al. "High-harmonic generation by resonant plasmon field enhancement", Nat., Vol. 453, No. 7196, pp. 757, 2008.
- [5] M. Mohebbi, S. Nazarpour Malaei, "Electron path control of high-order harmonic generation by a spatially inhomogeneous field", J. Mod. Opt. Vol. 63, No. 7, pp. 643-652, 2016.
- [6] Y. Y. Yang, et al. "The generation of MHz isolated XUV attosecond pulses by plasmonic enhancement in a tailored symmetric Ag cross nanoantenna with a few-cycle laser", Laser. Phys., Vol. 23, No. 4, pp. 045301, 2013.
- [7] A. Husakou, J. Herrmann, "Quasi-phase-matched high-harmonic generation in composites of metal nanoparticles and a noble gas", Phys. Rev. A., Vol. 90, No. 2, pp. 023831, 2014.
- [8] P. Biagioni, et al. "Cross resonant optical antenna", Phys. Rev. Lett., Vol. 102, No. 25, pp. 256801, 2009.
- [9] C. Noguez, "Surface plasmons on metal nanoparticles: the influence of shape and physical environment", J. Phys. Chem. C., Vol. 111, No. 10, pp. 3806-3819, 2007.

نظر بگیریم در این صورت حداقل شدت میدان در وسط گاف  $8.5 \times 10^{14} \text{ Wcm}^{-2}$  خواهد بود که از شدت آستانه برای تولید هارمونیک مرتبه بالا عبور خواهد کرد. اگر اتم آرگون را مستقیماً تحت تابش پالسی با شدت  $10^{11} \text{ Wcm}^{-2}$  قرار می دادیم، هیچ هارمونیک مرتبه ی بالایی تولید نمی شد. طیف هارمونیک های مرتبه بالای گسیلی با استفاده از نانوساختار در شکل ۴ نشان داده شده است. نتایج نشان می دهد که برای مورد بدون پوسته مرتبه تقریبی هارمونیک قطع مقدار ۳۵ می باشد. برای مورد نانوساختار روکش دار با افزایش ضخامت پوسته از مقدار ۱-۵ نانومتر، مرتبه تقریبی هارمونیک قطع تا مقدار ۷۵ افزایش می یابد. برای ضخامت پوسته ی ۵-۸.۵ نانومتر طیف های هارمونیک برای هر سه ضخامت تقریباً یکسان و مرتبه تقریبی هارمونیک قطع برای آن ها تقریباً ثابت باقی می باشد. می توان علت افزایش مرتبه ی فرکانس قطع با افزایش ضخامت پوسته از مقدار ۱-۵ نانومتر را در افزایش انرژی پاندرماتیو کسب شده در طول حرکت الکترون در میدان تقویت شده ی ناهمگن دانست. همچنین علت تغییر نکردن مرتبه ی فرکانس قطع تقریبی ۷۵ با افزایش ضخامت پوسته از مقدار ۵-۸.۵ نانومتر را در وابستگی شدید و غیرخطی مسیرهای الکترونی به ناهمگنی فضایی و زمانی میدان پراکنده و تقویت شده در محدوده ی گاف ۱۰ نانومتری دانست.

### نتیجه گیری

در این پژوهش به تولید هارمونیک مرتبه بالا با استفاده از نانوساختار بیضوی شکل پرداخته شد. این نانوساختار متشکل از یک جفت بیضوی دوار با هسته طلا با روکش از جنس نقره می باشد، که شعاع هسته طلا در حالت بدون روکش به ترتیب شعاع اصلی ۵۰ و شعاع های فرعی ۸.۵ نانومتر می باشند. با توجه به نتایج شبیه سازی تقویت میدان الکتریکی برای نانوساختار با ضخامت پوسته ی بیشتر و معین، افزایش بیشتری یافته است. در نتیجه مرتبه هارمونیک های گسیلی برای حالت بهینه در حدود ۷۵ می باشد که نسبت به آزمایش یانگ [۶] که در حدود ۴۰ می باشد برتری چشمگیری دارد. بنابراین با این چیدمان