

Формування наноструктур за допомогою синхронізації диполів в оптичному ближньому полі

Д.О. Василенко*, П.О. Кравчук, В.І. Григорук

Київський національний університет імені Тараса Шевченка, вул. Володимирська, 64/13,
01601 Київ, Україна

(Одержано 21.08.2018, у відредагованій формі – 07.12.2018, опубліковано online 18.12.2018)

Досліджені процеси, що відбуваються при взаємодії диполів в оптичному ближньому полі. Запропоновано метод їхнього розрахунку. Показано, що оскільки спектральний склад ближньо-польового випромінювання не є монохромним, це дає можливість ефективно впливати на дипольну структуру навіть полями, які є нерезонансними для цієї структури. Диполі з різними спектрами власних коливань можуть ефективно взаємодіяти один з одним через ближньопольові резонансні процеси. При цьому частота резонансу може значно відрізнятися від власної і залежить, головним чином, від зовнішнього ближнього поля та початкових умов. Доведено, що у зовнішньому сильноградієнтному ближньому полі в залежності від амплітуди та початкових умов можливе утворення з двох окремих дипольних структур однієї.

Ключові слова: Формування наноструктур, Оптичне ближнє поле, Диполь, Синхронізація, Резонанс.

DOI: [10.21272/jnep.10\(6\).06028](https://doi.org/10.21272/jnep.10(6).06028)

PACS numbers: 42.90. + m, 41.60. – m,
41.90. + e, 81.07. – b

1. ВСТУП

На сьогоднішній день процеси організації наноструктур залишаються актуальним питанням нанofізики та суміжних галузей науки (зокрема, оптики), цьому питанню і присвячена дана робота. Основою для наших теоретичних досліджень є експерименти [1-4], де структуроване осадження наночастинок проходить під дією оптичного ближнього поля закритичного волоконного зонда (наноголки). Стає очевидним, що ключовим поняттям при аналізі даної проблеми є диполь. Як відомо, класична електродинаміка визначає диполь Герца як носій елементарного струму. Так впродовж всієї довжини диполя існує деякий змінний струм. В нашій задачі використання такого поняття не є коректним, оскільки при таких геометричних масштабах та градієнтності зовнішніх і власних полів суттєвою стає взаємодія окремих зарядів, що входять до складу диполю. Тут і надалі під диполем ми будемо розуміти поляризовані атомарні і молекулярні структури, в яких можуть змінюватись відстані між зарядами. До того ж диполі неоднаково сприйнятливі до частот зовнішніх полів.

Теоретичні дослідження ближньопольових оптичних резонансів дипольних структур представлені невеликою кількістю робіт [5, 6]. У роботі [6] запропоновано розв'язок задачі диполь-дипольної взаємодії виключно квантово-механічним методом. Автори приходять до висновку, що в такій системі існують ближньопольові резонанси, частоти яких сильно відрізняються від власних частот електронних переходів окремих диполів. Вони також наголошують на уширенні спектральних ліній атомів, що відбувається в процесі ближньопольової резонансної взаємодії. Проте, як відмічають самі автори, весь розв'язок задачі побудований на дипольному наближенні, що вводить обмеження на заповненість теорії при зменшенні відстані між взаємодіючими диполями.

Існують й інші підходи до розв'язання поставле-

ної задачі, де автори пропонують розглядати не задачу диполь-дипольної взаємодії, а вже взаємодію електромагнітної хвилі з дипольним моношаром, вирішуючи систему рівнянь Максвелла для розповсюдження хвилі по неоднорідному поляризованому середовищу.

У всіх випадках задача зводиться до запису систем нелінійних диференціальних рівнянь та їхнього чисельного розв'язку. Ми пропонуємо принципово інший підхід до вирішення задачі. До того ж ми намагаємося уникати понять дипольного моменту та густини струму як таких, що потребують обережного і коректного використання, бо при таких відстанях взаємодії (ближня зона) суттєвим є вже не диполь Герца, а два окремих зв'язаних заряди. І, таким чином, поле, що створює навколо себе такий диполь, є ні чим іншим як суперпозицією полів кожного з зарядів, що рухаються, а не поле, створене елементом струму (як у моделі диполя Герца). Геометричні та енергетичні масштаби даної задачі дозволяють нам розглядати її з класичної точки зору, а саме: знайшовши функцію Лагранжа та записавши рівняння руху, визначити положення дипольних зарядів в кожний момент часу, що вже є непрямою відповіддю на питання про взаємодію двох осцилюючих об'єктів у ближньому полі, просторову конфігурацію системи диполів тощо.

2. ОПТИЧНА БЛИЖНЬОПОЛЬОВА ВЗАЄМОДІЯ ДИПОЛІВ

По своїй суті, ми маємо задачу на знаходження положення зарядів в кожний момент часу. Оскільки ми оперуємо невеликою кількістю зарядів, то в нас є можливість записати повністю рівняння руху для кожного з них. Загальний вигляд системи рівнянь є наступним:

* vda7@ukr.net

$$m_{ij}\ddot{\mathbf{r}}_{ij} = \mathbf{F}_{NF_{ij}} + \mathbf{F}_{ac_{ij}} + \mathbf{F}_{d_{ij}}, \quad (1)$$

де i – номер диполя, j – номер заряду диполя, \mathbf{F}_{NF} – сила з боку зовнішнього оптичного ближнього поля, \mathbf{F}_{ac} – сила з боку електромагнітних полів зарядів, що рухаються прискорено, \mathbf{F}_d – сила, що утримує пару зарядів у зв'язаному стані як єдину систему – диполь (внутрішньодипольна сила). В нашій моделі чотири заряди – два диполі, що взаємодіють між собою у зовнішньому полі. Праворуч стоїть сума всіх сил, що діють на заряд.

В загальному випадку вираз для сил матиме наступний вигляд (в СГСЕ):

$$\mathbf{F} = q \left(\mathbf{E} + \frac{1}{c} \dot{\mathbf{r}} \times \mathbf{H} \right).$$

Сила з боку зовнішнього поля, створюваного закритичним оптоволоконном (наноголкою), буде також залежати й від місця розташування диполів, оскільки ближнє поле є сильноградієнтним. Для наведених зарядами полів ми скористаємось співвідношеннями Лієнара-Віхерта та зв'язком векторного і скалярного потенціалів з електричним та магнітним полями при відомій калібровці Лоренца:

$$\varphi = \frac{q}{r},$$

$$\mathbf{A} = \frac{q}{c} \cdot \frac{\dot{\mathbf{r}}}{r},$$

$$\mathbf{H} = \text{rot } \mathbf{A},$$

$$\mathbf{E} = -\text{grad } \varphi - \frac{1}{c} \cdot \frac{\partial \mathbf{A}}{\partial t}.$$

Остаточно вирази для сили з боку електромагнітного поля матимуть наступний вигляд:

$$\mathbf{F} = q^2 \left(\frac{1}{c^2} \left(\dot{\mathbf{r}} \times \text{rot } \frac{\dot{\mathbf{r}}}{r} - \frac{\partial \dot{\mathbf{r}}}{\partial t} \frac{1}{r} \right) - \text{grad } \frac{1}{r} \right).$$

Для повноти картини треба визначитись з рухом зарядів у диполі. Рівняння руху (коливань) для обох зарядів запишуться наступним чином:

$$x_{1,2}(t) = l_0 \mp x_0 \cos \omega t.$$

Час проходження сигналу від заряду до вибраної точки простору може бути записаним в наступному вигляді:

$$\Delta t_{1,2}(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{c} \sqrt{(x \mp x_0 \cos \omega t)^2 + y^2 + z^2}.$$

Це і будуть відповідні часові затримки сигналів. Тоді результуюче поле буде таким:

$$\mathbf{E}_1(\mathbf{r}, t - \Delta t_1) + \mathbf{E}_2(\mathbf{r}, t - \Delta t_2) = f(\omega).$$

Стає видно, що оскільки частота входить до часу нелінійним чином, то виникають гармоніки вищих порядків, і в загальному випадку сигнал буде не одночастотним. Появу ближнього поля ми також бачимо в цих рівняннях, оскільки при більш значних відстанях, де амплітуда коливань мала, затримку часу мо-

жна розкласти в ряд Тейлора до першого доданку, і тоді ми отримуємо вираз, що містить косинус, який при розрахунку вектора Пойнтінга й дасть лише дальньопольову (нульову) та ближньопольову (другу) компоненти. Це як граничний випадок.

Розглянемо спочатку випадок, коли один із диполів буде слугувати генератором зовнішнього поля, а другий буде знаходитись у цьому полі. Розгляд цієї ситуації нам дасть відповідь, як себе поведуть в такому полі електромагнітно сприйнятливі структури та виділити сили, що притягують їх. На практиці це відповідає ситуації, коли молекулярна структура притягується до вже існуючого молекулярного нанокластера, який має багато коливальних мод. Далі ми маємо на меті опосередковане моделювання експериментів із нанобудівництва на зразок робіт [1-4]. Таким чином, зовнішнім збуджувачем буде виступати стравлений кінець оптоволокну, у ближньому полі якого ми розмістимо дві пари зв'язаних зарядів і проаналізуємо, як ці диполі будуть себе вести. Також ми спробуємо врахувати неоднаковість частотних сприйнятливостей диполів по відношенню до зовнішніх полів.

Розпишемо систему рівнянь (1) для випадку, коли зовнішнє поле збуджує два диполі (пару молекулярних / атомарних структур):

$$\begin{cases} m_{11}\ddot{\mathbf{r}}_{11} = \mathbf{F}_{NF_{11}} + \mathbf{F}_{ac_{11}} + \mathbf{F}_{d_{11}}, \\ m_{12}\ddot{\mathbf{r}}_{12} = \mathbf{F}_{NF_{12}} + \mathbf{F}_{ac_{12}} + \mathbf{F}_{d_{12}}, \\ m_{21}\ddot{\mathbf{r}}_{21} = \mathbf{F}_{NF_{21}} + \mathbf{F}_{ac_{21}} + \mathbf{F}_{d_{21}}, \\ m_{22}\ddot{\mathbf{r}}_{22} = \mathbf{F}_{NF_{22}} + \mathbf{F}_{ac_{22}} + \mathbf{F}_{d_{22}}. \end{cases} \quad (2)$$

Як бачимо, для самого остаточного випадку (по компонентах) отримуємо систему дванадцяти нелінійних диференціальних рівнянь другого порядку.

У випадку, коли диполь збуджує інший диполь, $\mathbf{F}_{NF_{ij}} = 0$.

3. ВНУТРІШНЬОДИПОЛЬНА СИЛА

Окреме питання даної проблеми полягає у тому, яка сила утримує заряди зв'язаними, дозволяючи їм лише коливатись. Причому сприйнятливість різних структур до частоти збуджуючого поля не є однаковою. Проте дана проблема виходить за рамки нашого аналізу, і в цілому питання про силу, яка утримує електрон на орбіталі, навіть в квантовій механіці, не є тривіальним. В рамках даного дослідження досить прийняти, що є де-факто сила, яка певним чином утримує електрон на орбіталі. Про цю силу нам відоме наступне:

- При віддаленні електрона від стаціонарного положення на орбіталі ця сила намагається повернути його в початковий рівноважний стан. В лінійному наближенні це буде звичайний закон гармонійних коливань.
- Величина цієї сили значно більша за сили, що виникають при дії зовнішніх електромагнітних полів. Інакше це призводило б до іонізації атомів і молекул.
- При таких величинах зовнішніх полів коливання можна вважати малими, тобто гармонійними.
- Величина цієї сили повинна залежати від частоти

зовнішнього поля.

Всі ці факти ми повинні врахувати при побудові моделі. Ще раз зазначимо, що природа такої взаємодії нас на даному етапі не цікавить, а важливими є її фізичні властивості. Причому це ніяк не обмежує можливість моделювання фізичної картини.

Зі всього вищесказаного можна записати наступне:

$$\mathbf{F}_d = -A(\omega) \cdot (\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2 - \mathbf{l}_0), \quad (3)$$

де l_0 – початкова (рівноважна) відстань між зв'язаними зарядами, а $A(\omega)$ – деяка функція, що характеризує частотну сприйнятливість. Враховуючи, що будь-які структури мають свої резонансні частоти, і ми розглядаємо поки що ідеалізовану модель, а саме два різних диполя з різними частотними характеристиками, що знаходяться у спільному та зовнішньому полях, не уточнюючи, що являють собою ці диполі, можемо покласти цю функцію як розподіл Гауса, що є природнім для такого типу процесів:

$$A_1(\omega) = \exp\left(-\frac{(\omega - \omega_0)^2}{\Omega^2}\right), \quad (4)$$

$$A_2(\omega) = \exp\left(-\frac{(\omega - \omega_0 - \Delta\omega)^2}{k \cdot \Omega^2}\right),$$

де k та $\Delta\omega$ – параметри, що характеризують положення та частотне уширення кривих, змінюючи які ми маємо можливість моделювати поведінку системи.

Проте важливим є той факт, що ми використовуємо рівняння, в яких аргументом є час, а не частота, тому напряду підставляти (3) в (2) ми не можемо. Для коректності перейдемо від частотного представлення сили до часового, виконавши перетворення Фур'є:

$$\mathbf{F}_d(t) = -(\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2 - \mathbf{l}_0) \cdot \frac{2}{T} \cdot \sum_n [A(\omega) \cos(n\omega t) d\omega.$$

Домноживши цю силу на $\mathbf{e}_i(\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2) / |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|$, отримаємо потрібний нам розклад по компонентах.

4. РЕЗУЛЬТАТИ ТА ОБГОВОРЕННЯ

Приведемо графіки розв'язків системи рівнянь (2), на яких будуть наведені величини відносно до їх початкових значень. Рівноважна довжина диполя складає $5 \cdot 10^{-10}$ м, частота $\omega = 10^{13}$ рад/с. На рис. 1 зображено випадок, коли диполь збуджує інший диполь. З графіків видно, що їхні коливання добре синхронізуються, і в результаті вони коливаються як єдина структура. На рисунку зазначені радіус-вектори додатнього заряду першого диполя \mathbf{r}_{11} та від'ємного заряду другого диполя \mathbf{r}_{22} .

Далі помістимо два однакових диполя з характеристиками у відповідності до виразів (4) в ближнє поле закритичного оптоволоконного хвилеводу і будемо змінювати його амплітуду. При малій амплітуді ближнього поля коливання носитимуть несинхронізований характер, та їхні частоти будуть у відповідності до власних частот, заданих у виразах (4) (рис. 2). При збільшенні амплітуди, сила з боку ближнього поля стає найбільшою, і тому саме вона задає рух двох дипольних структур (рис. 3). Пояснити це можна наступним чином.

В лінійному наближенні силу дії з боку зовнішнього поля можна розкласти в ряд Тейлора.

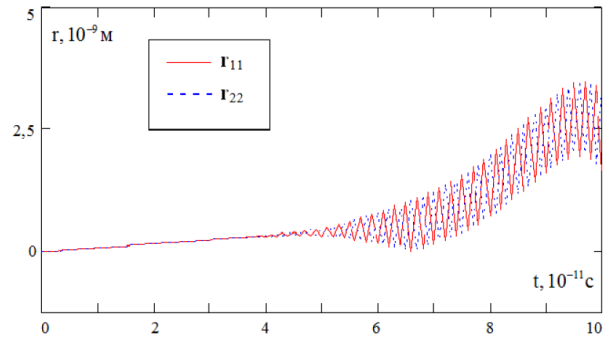


Рис. 1 – Рівняння руху (коливань) двох диполів у випадку, коли один диполь збуджує інший

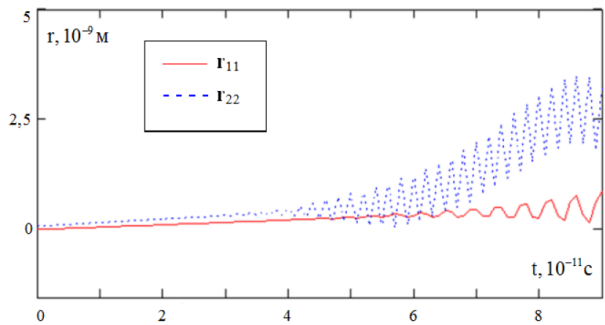


Рис. 2 – Рівняння руху (коливань) двох диполів у зовнішньому ближньому полі з малою амплітудою

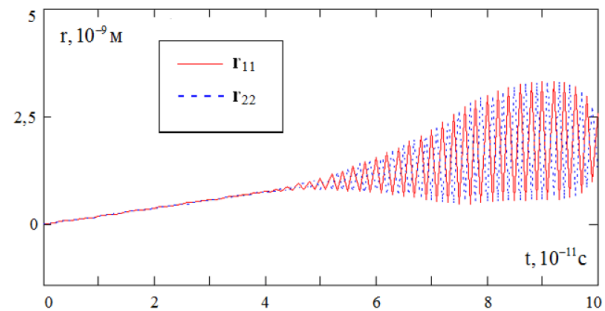


Рис. 3 – Рівняння руху (коливань) двох диполів у зовнішньому ближньому полі з великою амплітудою

При цьому всі коефіцієнти будуть пропорційні до амплітудних характеристик цього самого поля. А з врахуванням використання системи рівнянь (2), де стоїть друга похідна від радіус-вектора за часом, все це робить дані коефіцієнти частото-задаючими. Так, ці системи рівнянь при великих амплітудах будуть нагадувати звичайні рівняння гармонічних коливань. Таким чином, при збільшенні амплітуд дві структури навіть із дещо різними фазовими портретами обов'язково ввійдуть у синхронізм одна з одною на частотах, які можуть і не співпадати з їх власними. А як тільки ми змусимо їх рухатись у фазі одна відносно одної – далі електростатичні сили зорієнтують їх у положення, що відповідає мінімуму повної енергії системи.

Розглянемо випадок відсутності взаємодії між структурами (рис. 4). Як показують дослідження, це можливо у випадку, коли одна із структур виходить із

області дії ближнього поля, або по причині початкових умов знаходиться там. В цьому випадку структури розлітаються і набувають коливального руху.

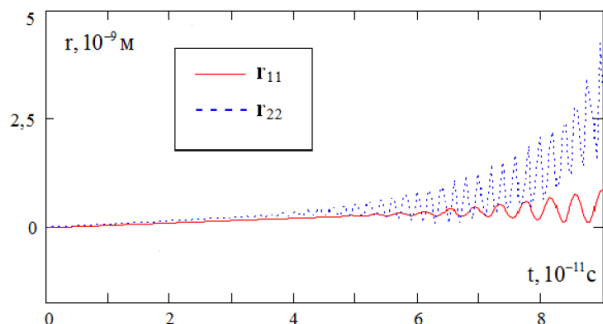


Рис. 4 – Рівняння руху (коливань) двох диполів у випадку, коли один із диполів знаходиться поза межами дії зовнішнього ближнього поля

Стає зрозумілим, що можливість синхронізації коливань структур напряму залежить від того, чи однаково чиним вони реагують на зовнішні поля. Так, для успішної синхронізації мають бути схожими фазові портрети їхніх власних коливань. Таким чином, одним із найважливіших параметрів для аналізу взаємодії є фазовий портрет структури та його сумісність із портретами інших об'єктів аналізу.

Таким чином, у сильноградієнтному полі в залежності від відстані до джерела випромінювання частота вимушених коливань буде різною. Тому й осадження для різних дипольних структур відбувається на тих ділянках, де коливання входять в резонанс і синхронізуються з ближнім полем наноголки. Як було відмічено раніше, частота вимушених коливань визначається амплітудою зовнішнього ближнього поля.

5. ВИСНОВКИ

На невеликих відстанях (ближня зона) від диполя електромагнітні поля, що створюються ним при коли-

ванні, відрізняються від тих, що описуються виразами для класичного диполя Герца. Особливості діаграми направленості та спектру мають пряме відношення до утворення впорядкованих структур із цих диполів.

Спектральний склад випромінювання на тих же невеликих відстанях не є монохромним, що дає можливість ефективно впливати на дипольну структуру навіть полями, які є нерезонансними для цієї структури. При великих амплітудах ближніх полів є можливою синхронізація коливань диполів із різними резонансними частотами. При малих амплітудах поле збуджує коливання, що є близькими до власних, тому синхронізації коливань може й не відбутися.

Будова складної наноструктури із двох простіших проходить в два етапи. На першому вони синхронізуються одна з одною. На другому етапі в роботу включаються електростатичні сили, що притягують та переорієнтують структури у положення, що відповідає мінімуму повної енергії системи. На практиці це відповідає ситуації, коли молекулярна структура притягується до вже існуючого молекулярного нанокластера, який має багато коливальних мод. І якщо молекулі вдасться ввійти у стан синхронізації власних коливань із коливаннями нанокластера, то за допомогою вже електростатичних сил відбудеться добудова нанокластера. Таким чином відбувається структуроване осадження наночастинок під дією оптичного ближнього поля закритичного волоконного зонда (наноголки).

Керування частотою коливань можливе не тільки за допомогою амплітуди поля. Користуючись тим, що поля є сильно градієнтними, і всі коефіцієнти розкладу залежать від відстаней, залишається експериментально підбирати відстані, на яких взаємодія проходить найбільш ефективним чином.

ПОДЯКА

Автори висловлюють подяку В.С. Сидоренку за активну участь в даному дослідженні.

Formation of Nanostructures by Synchronizing Dipoles in an Optical near Field

D.O. Vasylenko, P.O. Kravchuk, V.I. Grygoruk

Taras Shevchenko National University of Kyiv, 64/13, Volodymyrska Str., 01601 Kyiv, Ukraine

The processes occurring during the interaction of dipoles in an optical near field are investigated. A method for their calculation is proposed. It is shown that since the spectral composition of the near-field radiation is not monochrome, this makes it possible to effectively influence the dipole structure even by fields that are nonresonant for this structure. Thus, dipoles with different spectra of natural oscillations can effectively interact with each other through near-field resonance processes. In this case, the resonance frequency can differ significantly from the natural frequency and depends mainly on the external near field and initial conditions. It is proved that, in the external strong-gradient near field, depending on the amplitude and initial conditions, it is possible to form one of two separate dipole structures.

Keywords: Construction of nanostructures, Optical near field, Dipole, Synchronization, resonance.

СПИСОК ЛІТЕРАТУРИ

1. T. Kawazoe, Y. Yamamoto, M. Ohtsu, *Appl. Phys. Lett.* **79**, 1184 (2001).
2. J.R. Rabreau, S.T. Huntington, A.D. Greentree, S. Prawer, *Appl. Phys. Lett.* **86**, 134104 (2005).
3. T. Kawazoe, K. Kobayashi, M. Ohtsu, *Appl. Phys. B* **84**, 247 (2006).
4. M. Naruse, T. Yatsui, H. Hori, K. Kitamura, M. Ohtsu, *Opt. Express* **15**, 11790 (2007).
5. O.N. Gadomsky, A.S. Kadochkin, *Opt. Spectrosc.* **98**, 265 (2005).
6. O.N. Gadomsky, A.G. Glukhov, *J. Exp. Theor. Phys.* **103**(1), 23 (2006).