

8/



1. A. 58



دانشگاه شهید بهشتی

دانشکده علوم

پایان نامه

جهت اخذ درجه کارشناسی ارشد فیزیک

گرایش حالت جامد

عنوان:

بررسی اپتیک غیرخطی سطوح فلزات

نگارش:

شیما نظری

استاد راهنما:

دکتر محمد مهدی طهرانچی

شهریورماه ۱۳۸۷

۱۰۸۰۷۵

۸۷/۱۱/۰۲۰۹۷  
۸۷/۱۰/۲۴

اطلاعات کتابخانه‌ای  
کتابخانه مرکزی  
دانشگاه شهید بهشتی

۱- ۲/ ۸۰۷/ ۱۴۸۷

بسمه تعالی

« صور تجلسه دفاع پایان نامه دانشجویان دوره کارشناسی ارشد »

تهران ۱۹۸۳۹۶۳۱۱۳ اوین

تلفن: ۲۹۹۰۱

بازگشت به مجوز دفاع شماره ۲۹۷۲/۲۰۰/ مورخ ۱۳۸۷/۶/۱۹ جلسه هیأت  
داوران ارزیابی پایان نامه خانم شیما نظری قهرودی به شماره شناسنامه  
۳۳۶۷۸ صادره از تهران متولد ۱۳۶۰ دانشجوی دوره کارشناسی ارشد ناپیوسته رشته  
فیزیک - حالت جامد  
با عنوان :

بررسی اپتیک غیر خطی سطوح فلزات

به راهنمایی:

دکتر محمد مهدی طهرانچی

طبق دعوت قبلی در تاریخ ۱۳۸۷/۶/۱۴ تشکیل گردید و براساس رأی هیأت داوری و با  
عنایت به ماده ۲۰ آئین نامه کارشناسی ارشد مورخ ۷۵/۱۰/۲۵ پایان نامه مزبور با  
نمره ۱۸/۷ و درجه عالی مورد تصویب قرار گرفت.

۱- استاد راهنما: آقای دکتر محمد مهدی طهرانچی

۲- استاد مشاور: .....

۳- استاد داور: آقای دکتر محمد حسین مجلس آرا

۴- استاد داور و نماینده تحصیلات تکمیلی: آقای دکتر غلامرضا جعفری

۵- معاون تحصیلات تکمیلی دانشکده: آقای دکتر خسرو جدیدی

## تشکر و قدردانی :

دنیا به نام خدا خوش است و عقبی به عفو او و بهشت به دیدار او. خدایا، به نشان تو بیندگانیم، به شناخت تو زندگانیم، به نام تو آبادانیم، به یاد تو شادانیم، به یافت تو نازانیم، مست از جام مهر تو مائیم، صید عشق در دام تو مائیم.

نگارش این پایان‌نامه مرهون راهنمایی‌های استاد ارجمند، جناب آقای دکتر طهرانچی می‌باشد که از ایشان کمال تشکر و سپاس را دارم و موفقیت بیش از پیش ایشان را آرزومندم.

و همچنین از خانمها مهدیه هاشمی، مهری حمیدی و نرگس انصاری که در مراحل انجام این کار از راهنمایی ایشان بهره برده‌ام، تشکر می‌کنم.

تقدیم بہ عزیزانم

مادر

پ

مادر

و محمد رضا

## چکیده

داده های حاصل از بازتاب نور از سطح فلزات می توانند در بررسی خواص سطحی آنها اطلاعات مناسبی را در اختیار محققین قرار دهند.

ما در این پایان نامه، به بررسی سازوکار خواص اپتیک غیرخطی حاصل از برهمکنش نور با سطح فلزات می پردازیم. در این راستا قسمت ناهمسانگرد پاسخ اپتیک غیرخطی هارمونیک دوم سطوح فلزی را با رویکردی کوانتومی محاسبه می نماییم. در این محاسبات عدد اتمی فلز و راستای کریستالی مورد بررسی، از اهمیت زیادی برخوردار هستند. در اینجا ما فلز آلومینیوم با عدد اتمی ۱۳ و راستای (۱۱۱) را بررسی می کنیم.

در محاسبات میکروسکوپی انجام شده که در آن از مدل دوباندی و تئوری تابعی چگالی استفاده شده است، خواهیم دید جریان مماسی، عمق نفوذی به اندازه چند آنگستروم دارد که منشاء فیزیکی این عمق نفوذ زیاد طبیعت غیرجایگزیده حالت‌های الکترونی بلاخ در آلومینیوم است.

نتایج به دست آمده با استفاده از این دو مدل، همخوانی خوبی با نتایج تجربی دارد. که این مسئله بیانگر کارآمدی مدل تئوری می باشد.

واژه های کلیدی: هارمونیک دوم، قطبش غیرخطی، تانسور پذیرفتاری، مدل دوباندی، تئوری تابعی

چگالی، آلومینیوم

۱.....	فصل اول: مقدمه.....
۲.....	۱-۱) تاریخچه.....
۲.....	۱-۱-۱) ماهیت نور.....
۳.....	۱-۱-۲) اپتیک غیرخطی و مدولاسیون نور.....
۹.....	۲-۱) زمینه های کاربردی.....
۱۲.....	فصل دوم: محاسبه عناصر تانسور پذیرفتاری.....
۱۴.....	۱-۲) چگالی جریان حجمی.....
۱۶.....	۲-۲) نظریه اختلال وابسته به زمان.....
۲۱.....	۳-۲) محاسبه تانسور پذیرفتاری.....
۲۳.....	فصل سوم: محاسبه پذیرفتاری با استفاده از مدل دوباندی و نظریه تابعی چگالی.....
۲۵.....	۱-۳) مدل دوباندی.....
۲۸.....	۲-۳) توزیع فضایی جریان غیرخطی.....
۲۹.....	۳-۳) نوارهای انرژی.....
۲۹.....	۴-۳) نظریه تابعی چگالی: راهی برای حل کوانتومی مسائل بس ذره‌ای.....
۳۰.....	۳-۴-۱) تقریب برن اپنهاইمر.....
۳۰.....	۳-۴-۲) نظریه تابعی چگالی.....
۳۱.....	۳-۴-۳) تئوری هوهنبرگ و کوهن.....
۳۱.....	۳-۴-۴) معادلات کوهن-شم.....
۳۳.....	۳-۴-۵) تابعی پتانسیل تبادلی - همبستگی.....

۳۴	..... حل معادلات..... (۵-۳)
۳۵	..... روش شبه پتانسیل..... (۶-۳)
۳۷	..... روش امواج تخت تعمیم یافته (APW)..... (۷-۳)
۴۰	..... روش امواج تخت تعمیم یافته خطی شده (LAPW)..... (۸-۳)
۴۰	..... روش LAPW معمولی..... (۱۰-۸-۳)
۴۲	..... LAPW با مدارهای موضعی (LAPW+LO)..... (۲-۸-۳)
۴۳	..... روش APW+lo..... (۹-۳)
۴۳	..... روش APW+lo+LO..... (۱۰-۳)
۴۴	..... روش ترکیبی LAPW و APW+lo..... (۱۱-۳)
۴۶	..... فصل چهارم: نتایج و بحث پیرامون آن.....
۴۸	..... (۱-۴) تئوری.....
۴۹	..... (۲-۴) مقایسه نوارهای انرژی در دو مدل دوباندی و تابعی چگالی.....
۵۰	..... (۳-۴) مقایسه پذیرفتاری در دو مدل دوباندی و تابعی چگالی.....
۵۴	..... (۴-۴) زمینه تئوری آزمایش.....
۵۶	..... (۵-۴) دستگاه تجربی.....
۵۶	..... (۱-۵-۴) شرح آزمایش بینگ و همکارانش.....
۵۷	..... (۲-۵-۴) شرح آزمایش جانز و همکارانش.....
۵۸	..... (۲-۵-۴) نتایج تجربی.....
۶۱	..... (۶-۴) مقایسه تئوری و تجربه.....
۶۴	..... (۷-۴) نتیجه.....
۶۵	..... پیوست: آموزش برنامه WIEN۲k و رسم نوار انرژی به روش DFT.....
۶۶	..... (۱) قواعد نامگذاری.....
۶۶	..... (۲) ایجاد محیط گرافیکی جدید.....



۶۶	ایجاد ورودی اصلی
۶۷	ترتیب اجرای برنامه ها
۶۸	برنامه های مرحله خودسازگار
۶۸	NN (۱-۵)
۶۸	View outputnn (۲-۵)
۶۹	SGROUP (۳-۵)
۶۹	View outputsgroup (۴-۵)
۶۹	SYMMETRY (۵-۵)
۷۰	View outputs and copy struct_st (۶-۵)
۷۰	LSTART (۷-۵)
۷۰	KGEN (۸-۵)
۷۰	DSTART (۹-۵)
۷۱	برنامه های مرحله خودسازگار
۷۱	LAPW۰ (۱-۶)
۷۱	LAPW۱ (۲-۶)
۷۱	LAPW۲ (۳-۶)
۷۱	LCORE (۴-۶)
۷۲	Mixer (۵-۶)
۷۲	بهینه سازی مقدار $R_{mt}K_{max}$ و تعداد kهای انتخابی
۷۵	محاسبه خواص
۷۵	ساختار نواری
۷۶	energy.Al فایل (۱-۹)
۷۷	مراجع

# فصل اول

مقدمه

## ۱-۱) تاریخچه

## ۱ ۱ ۱) ماهیت نور

ابن هیثم بدون شک بزرگترین محقق در علم نورشناخت بوده است. پیش از وی دانشمندان مسلمان با کتاب مناظر اقلیدس و تحریر لئون اسکندرانی و آثار هرون و ارشمیدس و کارهای آنتنیوس در آینه های منحنی، و تحقیقات جالب توسط بطلمیوس در انکسار نور، آشنایی داشتند. ابن هیثم نیز از این منابع، از اقلیدس و بطلمیوس، از کتاب اثنال علوی ارسطو و مخروطات آپولونیوس بهره برداری کرده است ولی بنیان نورشناخت را دگرگون کرد و آن را به صورت علم بسیار منظم و مشخصی درآورد. وی بحث کامل ریاضی را با نمونه های تصویری عالی فیزیکی و تجربه های دقیق، ترکیب کرد. به منظور تشخیص حرکت مستقیم الخط نور، یافتن خصوصیات سایه، موارد استعمال عدسیها و خاصیت اتاق تاریک، تجربه هایی انجام داد و نخستین بار در مورد اینها و بسیاری نمودهای نورشناختی اساسی دیگر به تحلیل ریاضی پرداخت. در مبحث انعکاس نور، که یونانیان پیش از آن اکتشاف مهمی کرده بودند، سهم عمده ابن هیثم تحقیق در آینه های سهمی و کروی بود. اما سهم وی در مسئله انکسار نور، مهمتر است. وی قرنهای پیش از نیوتون، مستطیل سرعتها را بر سطح منکسر کننده تطبیق داده و به اصل حداقل زمان معتقد بوده است.

در قرن های شانزدهم و هفدهم میلادی، نور یا به صورت ذره یا به صورت موج تصور می شد. در قرن بیستم مشخص شد که نور هم موج است و هم ذره و در عین حال دقیقاً هیچ یک از این دو نیست. دوگانگی ذره-موج با ابداع الکترودینامیک کوانتومی حل شد که از موفقترین ساختارهای نظری در تاریخ فیزیک است. در قرن هفدهم، برجسته ترین حامی نظریه ی ذره ای نور، ایزاک نیوتون بود. او در رساله ی اپتیک خود، پرتوهای نور را به وضوح جویبارهایی از ذرات بسیار کوچک در نظر گرفت که از چشمه ی نور گسیل می شوند و در خط راست حرکت می کنند و فرضیه ی ذره ای را با اعتقاد به اینکه با پدیده ها، به اندازه کافی، توجیه می شود، پذیرفت. کریستین هویگنس، دانشمند هلندی معاصر نیوتن، در کتاب نور خود مدافع این نظر بود که نور یک حرکت موجی است که از چشمه ی نور در تمام راستاها، به اطراف پخش می شود و در ماده کشسانی به نام اتر، که همه جا را پر کرده است، انتشار می یابد. او با انتخاب نظریه ی موجی، توانست قوانین بازتاب و شکست را استنتاج کند و شکست دوگانه در کلسیت را نیز توضیح دهد.

قبل از گذشت یک قرن از انتشار اپتیک نیوتن، توماس یانگ انگلیسی، آزمایش تعیین کننده ای انجام داد که تعبیری موجی را ایجاب می کرد و به این ترتیب اوضاع به نفع نظریه موجی نور تغییر کرد. این آزمایش معروف دو شکافی بود که در آن نور تکفامی از یک چشمه ی کوچک به پرده کدری دارای دو روزنه کوچک نزدیک به هم می تابید. سایه های مشاهده شده، نقش تداخل پیچیده ای مانند آنچه با امواج آب ایجاد می شود، تشکیل می دادند. موفقیت های نظریه موجی تا قرن بیستم ادامه یافت.

در سال ۱۸۲۱ اوگوستن فرنل، نتایج آزمایشها و تحلیل خود را که نشان می داد نور باید موج عرضی باشد، منتشر کرد. بر این اساس، معلوم شد شکست دوگانه در کلسیت را می توان پدیده‌ای مربوط به نور قطبیده دانست. فرض شده بود که امواج نور در اثر الزام طولی هستند، مانند امواج صوت در یک شاره، که نمی‌تواند حامل ارتعاشات عرضی باشد. فرنل برای هر یک از دو مولفه نور قطبیده، معادلات فرنل را به دست آورد که دامنه‌ی نور بازتابیده و عبور کرده را در سطح مشترک تخت بین دو محیط اپتیکی تعیین می‌کنند.

جیمز کلارک ماکسول که در حوزه الکتریسیته و مغناطیس کار می‌کرد اصول شناخته شده را در چهار معادله، به نام معادلات ماکسول، ترکیب کرد. این معادلات سرعتی برای موج الکترومغناطیسی در اتر، پیش‌بینی می‌کردند که سرعت اندازه‌گیری شده نور از آب درآمد. و سرشت الکترومغناطیسی نور را نشان داد. از آن پس، نور، ناحیه‌ی خاصی از طیف تابش الکترومغناطیسی در نظر گرفته شد.

### ۱-۱-۲) اپتیک غیرخطی و مدولاسیون نور

از بین پدیده‌های غیرخطی که پس از اختراع لیزر در سال ۱۹۶۱ مشاهده شد و مطالعه بر روی آنها آغاز و همگام با پیشرفت تکنولوژی لیزر بر قدرت آن افزوده شد؛ تولید هارمونیک دوم به شکل ویژه‌ای مورد توجه قرار گرفت. فقط نور لیزر است که شدت کافی برای نشان دادن خصوصیات اپتیکی یک ماده را دارد. اپتیک خطی یعنی یک آشفتگی اپتیکی در محیط منتشر می‌شود، که می‌توان آن را با معادله‌ی موج خطی توصیف کرد. در این حالت طول موج و سرعت باریکه‌ی نور در ماده‌ی شفاف، برای توصیف رفتار آن کافی است و اصل برهم نهش برقرار است.

اصل برهم نهش، یعنی جابجایی برآیند عبارت است از مجموع جابجایی‌های جداگانه موجهای مؤلف. که با استفاده از این اصل می‌توان دامنه و چگالی توان موج برآیند را محاسبه کرد. این اصل برای تمام موجها معتبر است. فرآیندهایی از جمله فرآیند عبور، بازتاب، شکست، برهم‌نهش و دوشکستی، در مقوله‌ی اپتیک خطی قرار دارند.

وقتی شدت نور به اندازه کافی زیاد باشد، اپتیک خطی برای توصیف وضعیت موجود، کارآیی ندارد. با ایجاد نور شدیدتر و همدوس، خواص اپتیکی محیط مثل ضریب شکست، تابعی از شدت نور می‌شود و در تداخل دو یا چند موج نور، اصل برهم نهش برقرار نیست.

پدیده‌های غیرخطی از ناتوانی دوقطبیهای محیط اپتیکی برای پاسخ خطی به میدان متناوب  $E$  وابسته به باریکه‌ی نور، ناشی می‌شوند. هسته‌های اتمی و الکترونهای درونی، به ترتیب، سنگین‌تر و مقیدتر از آن هستند که به میدان متناوب  $E$  در بسامد نور در حدود  $10^{14}$  تا  $10^{15}$  Hz، پاسخ دهند. بنابراین الکترونهای بیرونی اتمهای ماده، عمدتاً باعث قطبش محیط اپتیکی توسط میدان  $E$  باریکه می‌شوند. وقتی نوسانهای این الکترونها در پاسخ به میدان، کوچک باشند، قطبیدگی، متناسب با

میدان  $E$  است. اما وقتی میدان  $E$  با شدت باریکه افزایش می‌یابد، تناسب دیگر دقیق نیست. قطبیدگی محیط خطی ناشی از میدان الکتریکی  $E$  به صورت

$$P = \epsilon_0 \chi E$$

است که  $\chi$  پذیرفتاری<sup>۱</sup> و  $\epsilon_0$  گذردهی خلاء<sup>۲</sup> است.

وقتی انحراف از خطیت کوچک باشد، می‌توان تغییر پذیرفتاری در محیط غیرخطی را با یک رشته‌ی توانی به صورت زیر

$$\chi = \chi_1 + \chi_2 E + \chi_3 E^2 + \dots$$

$$P = \epsilon_0 (\chi_1 E + \chi_2 E^2 + \dots)$$

نمایش داد. این رابطه بین  $P$  و  $E$  پاسخ محیط اپتیکی به میدان را کاملاً مشخص می‌کند.

اگر میدان  $E$  زیاد بزرگ نباشد، ضرایب جمله‌های با توان بزرگتر  $E$ ، به اندازه‌ای کوچکند که نمی‌گذارند این جمله‌ها تأثیر قابل ملاحظه‌ای روی قطبیدگی داشته باشند. تنها اگر نور شدید همدوس موجود باشد، این جمله‌های مرتبه بالاتر، مهم می‌شوند. همدوسی زیاد نور لیزر باعث می‌شود که باریکه در لکه‌های کوچکی با اندازه‌ای از مرتبه یک طول موج، متمرکز شود و در نتیجه میدانهای  $E$  با شدتی حدود  $V/m \cdot 10^{11}$  به وجود می‌آیند که از مرتبه میدانهایی هستند که الکترونها را در محیط اپتیکی به هسته‌ها مقید می‌کنند.

پیتر فرانکن و همکارانش<sup>۳</sup> [۱]، موفق به انجام اولین آزمایش اپتیک همدوس غیرخطی در دانشگاه میشیگان در سال ۱۹۶۱ شدند. این گروه خروجی همدوس  $\text{mm}694.3$  از یک لیزر یاقوت را روی بلور کوارتز متمرکز کردند و تولید هماهنگ دوم، وجود مؤلفه تابش همدوس فرابنفش ضعیف در  $\text{mm}347.15$  یعنی با دو برابر بسامد یا نصف طول موج نور برانگیزنده، در خروجی را آشکارسازی کردند.

تولید هماهنگ دوم ناشی از سهم جمله مرتبه دوم ( $P_2 = \epsilon_0 \chi_2 E^2$ ) است. که این جمله در قطبیدگی در ماده اپتیکی همسانگرد، یا ماده‌ای که مرکز تقارن دارد، سهم نیست. بلوری که دارای مرکز تقارن است، با یک مرکز وارونی مشخص می‌شود. به طوری که اگر مختصه شعاعی  $I$  به  $-I$  تبدیل شود، آرایه بلور بدون تغییر می‌ماند و در نتیجه پاسخ بلور به یک اثر فیزیکی، تغییر نمی‌کند. در این نوع بلور، وارونی میدان اعمال شده، نباید خواص فیزیکی را تغییر دهد.

$$\left. \begin{aligned} P_2 &= \epsilon_0 \chi_2 (+E)^2 \\ -P_2 &= \epsilon_0 \chi_2 (-E)^2 \end{aligned} \right\} P_2 = -P_2$$

<sup>۱</sup> Susceptibility

<sup>۲</sup> Permittivity of vacuum

<sup>۳</sup> Franken et al

پس تنها وقتی رابطه درست است که  $P_2 = 0$  باشد [۲]. تابش دو قطبی در مورد این مواد تنها به سطوح، که در آن تقارن وارونی شکسته شده، محدود می شود.

برای مواد چگال،  $\chi_1$  از مرتبه ی واحد،  $\chi_2$  از مرتبه:

$$\chi_2 \approx 5 \times 10^{-8} \text{esu} = 5 \times 10^{-8} \frac{\text{Cm}}{\text{StatVolt}}$$

و  $\chi_3$  از مرتبه:

$$\chi_3 \approx 3 \times 10^{-15} \text{esu} = 3 \times 10^{-15} \frac{\text{Cm}^2}{\text{StatVolt}^2}$$

خواهد بود [۳].

پیدایش هماهنگ دوم در قطبیدگی را می توان با استدلال ریاضی بررسی نمود. اگر میدان اعمال شده  $E$  یا یکی از مؤلفه های فوریه آن به صورت  $E = E_0 \cos \omega t$  باشد، داریم:

$$\begin{aligned} P_2 &= \epsilon_0 \chi_2 E_0^2 \cos^2 \omega t \\ &= \epsilon_0 \chi_2 E_0^2 \left[ \frac{1}{2} (1 + \cos 2\omega t) \right] \\ &= \frac{1}{2} \epsilon_0 \chi_2 E_0^2 + \frac{1}{2} \epsilon_0 \chi_2 E_0^2 \cos 2\omega t \end{aligned}$$

جمله اول، مؤلفه ثابت یا DC است که نمایشگر یکسوسازی اپتیکی است. جمله دوم، جمله ای با دو برابر بسامد میدان اپتیکی اعمال شده است.

نوری که در بسامد  $2\omega$  به طور پیوسته تولید شده است، به علت پاشیدگی با سرعتی متفاوت از نوری که دارای بسامد  $\omega$  است، در ماده اپتیکی حرکت می کند. دو موج تداخل کننده، ضمن حرکت در بلور، متناوباً همگام و ناهمگام می شوند [۲].

در بررسی تئوری اپتیک غیرخطی، از دو دیدگاه ماکروسکوپی و میکروسکوپی می توان بهره گرفت. مدل های میکروسکوپی براساس بررسی ساختار الکترونی سطح فلزات می باشد. مدل های مختلفی برای بررسی میکروسکوپی وجود دارد که انتخاب این مدلها به شرایط مسئله و نوع مواد وابسته است.

در سال ۱۹۶۵ هارمونیک دوم تولیدی از سطوح فلزی، برای اولین بار، توسط براون و همکارانش<sup>۱</sup>، مشاهده شد [۴].

بررسی کارهای تجربی اولیه به صورت تئوری با کار ژا<sup>۲</sup> در سال ۱۹۶۵ آغاز شد [۵]. او در یک کار کاملاً کلاسیک، قطبش

غیرخطی مرتبه دو را به شکل زیر در نظر گرفت:

<sup>۱</sup> Brown et al

<sup>۲</sup> Jha

$$P(2\omega) = \alpha(E \times \frac{\partial H}{\partial t}) + \beta E(\nabla \cdot E)$$

که  $H$  و  $E$  مولفه‌های میدان الکتریکی و مغناطیسی فرودی هستند، و پارامترهای  $\alpha$  و  $\beta$  به ساختار الکتریکی فلز وابسته‌اند. از تابش دوقطبی الکتریکی سطحی در این روش صرف‌نظر شده و اثر سطح به ترم دوم رابطه که ناشی از تغییرات سریع مؤلفه‌ی نرمال بردار میدان الکتریکی در سطح است، محدود شده است. در قسمت حجمی از آنجا که  $\nabla \cdot E = 0$  است، تنها ترم اول رابطه در القای قطبش حجمی مؤثر است.

در سال ۱۹۶۶، اشکرافت و لکنر<sup>۱</sup>، پتانسیلی برای فلزات مایع معرفی کردند که بعدها این پتانسیل به عنوان پتانسیل سطح در نظر گرفته شد [۶].

بکارگیری روشهای کوانتومی در بدست آوردن ثوابت دی الکتریک غیرخطی با کار ژا و وارکه<sup>۲</sup> در سال ۱۹۶۶ آغاز شد. در سال ۱۹۶۱، آدلر<sup>۳</sup> با دیدگاهی کوانتومی تانسور ثابت دی الکتریک<sup>۴</sup> خطی جامدات را با در نظر گرفتن ساختار نواری برای این مواد بدست آورده بود [۷]. او برای این منظور نور را به صورت اختلالی شامل میدان‌های الکترومغناطیسی که بر ماده اثر می‌کند، در نظر گرفت. ژا و وارکه نیز به روشی مشابه، الکترون‌ها را تحت یک پتانسیل پریودیک (علاوه بر پتانسیل سطح) در نظر گرفته و گذارهای بین باندهای این مواد را وارد حل مسئله یافتن ضرایب ثابت دی الکتریک غیرخطی کردند [۸]. آنها قطبش غیرخطی مرتبه دوی القا شده در محیط را مانند کار قبلی خود (و بدون در نظر گرفتن تابش دوقطبی سطحی) به فرم زیر در نظر گرفتند:

$$P^{(2\omega)}(NL) = \alpha(\omega, \omega)(E(\omega) \times H(\omega)) + \beta(\omega, \omega)(E(\omega) \nabla \cdot E(\omega))$$

و ضرایب  $\alpha$  و  $\beta$  را در حد فرکانس‌های پایین و در شرایطی که ترم اول رابطه تنها برای قسمت حجمی و ترم دوم بیان‌کننده اثر سطح است، بدست آوردند.

در سال ۱۹۶۸، ژا و بلومبرگن<sup>۵</sup> نشان دادند بدون توجه به جزئیات مکانیسم و مدل بکار رفته، قطبش غیرخطی القایی درون محیط‌های دارای تقارن مرکزی، به صورت زیر خواهد بود [۹]:

$$P^{NL}(2\omega) = (\delta - \beta - 2\gamma)(E(\omega) \cdot \nabla)E(\omega) + \beta E(\omega)(\nabla \cdot E(\omega)) + \gamma \nabla(E(\omega) \cdot E(\omega))$$

و یا به طور معادل به شکل:

<sup>۱</sup> Ashcroft & Lekner

<sup>۲</sup> Jha & Warke

<sup>۳</sup> Adler

<sup>۴</sup> Dielectric constant

<sup>۵</sup> Jha & Bloembergen

$$P^{NL}(2\omega) = (\delta - \beta)(E(\omega) \cdot \nabla)E(\omega) + \beta E(\omega)(\nabla \cdot E(\omega)) + \alpha E(\omega) \times H(\omega)$$

با  $\alpha = (2i\omega/c)\gamma$  که با استفاده از مدل‌های مختلف برای بررسی اثرات غیرخطی ثوابت  $\delta$ ،  $\gamma$  و  $\beta$  متفاوتی بدست می‌آید.

در این شرایط، هارمونیک دوم مشاهده شده از محیط‌های دارای تقارن وارونی تنها ناشی از چهارقطبی‌های الکتریکی و مستقل از شرایط سطح تصور می‌شد. به علاوه تصور می‌شد تولید هارمونیک دوم، مستقل از جهت برش کریستال نسبت به محوره‌های کریستالوگرافی است.

نخستین بار ونگ<sup>۱</sup>، در سال ۱۹۶۹ با مطالعاتی که بر روی مرزمايعات و هوا انجام داد؛ پیشنهاد تولید هارمونیک دوم با یک منشأ دوقطبی از سطح مواد همسانگرد<sup>۲</sup> را مطرح کرد [۱۰]. وجود یک منشأ دوقطبی در سطح برای هارمونیک دوم تولیدی، کاربرد آن را به عنوان ابزاری برای بررسی سطح مورد توجه قرار داد.

لانگ و کوهن<sup>۳</sup> در سال ۱۹۷۰، دو مدل برای بررسی ساختار الکترونی سطح فلزات ارائه کردند که در یکی از این مدل‌ها، هسته‌ها به عنوان زمینه‌ی بار مثبت یکنواخت و الکترون‌ها بارهای متحرک در این پتانسیل ثابت در نظر گرفته شدند و در مدل دیگر، یونها در نقاط یک نیم شبکه‌ی منظم قرار می‌گیرند و با شبه پتانسیل‌های مناسبی نشان داده می‌شوند. انرژی سطح فلزات مختلف محاسبه شده و با مقادیر تجربی آنها مقایسه می‌شود که در این بررسی، مدل شبکه یونی برای فلز آلومینیوم، مناسبتر از مدل زمینه یکنواخت، تشخیص داده می‌شود و پتانسیل اشکرافت که قبلاً به دست آمده بود (۱۹۶۶)، به عنوان پتانسیل سطح برای آلومینیوم در نظر گرفته می‌شود [۱۱].

اولین کاری که پاسخ هارمونیک دوم از سطح فلزات دارای تقارن مرکزی را مشخصاً مورد بررسی قرار داد، کاری نیمه کلاسیک از استرن و رادنیک<sup>۴</sup> در سال ۱۹۷۱ بود [۱۲]. با تقریب میدان موضعی (تقریبی که قطبش ماده یا جریان در یک نقطه تنها به میدان الکترو-مغناطیسی در آن نقطه بستگی دارد) فلز به صورت گاز الکترونی آزاد همگنی در نظر گرفته شد که فضای  $Z < 0$  را در بر گرفته است (از اثرات زبری سطح و ساختار باندهای ماده صرف‌نظر شد) و نور به صورت یک عامل اختلال بر آن اثر می‌کند. با حضور این اختلال سه نوع جریان که در فلز القا می‌شود، در نظر گرفته شد: یک جریان حجمی و دونوع جریان سطحی: موازی و عمودی. جریان حجمی متناسب با  $E \times H$  است که بیانگر اثر میدان مغناطیسی، به واسطه نیروی لورنتس،

<sup>۱</sup> Wang

<sup>۲</sup> Isotropic

<sup>۳</sup> Lang & Kohn

<sup>۴</sup> Stern & Rudnick



بر روی جریان ناشی از میدان الکتریکی در فلز است. جریانهای سطحی به دلیل تغییرات سریع میدان الکتریکی روی سطح و شکسته شدن تقارن مرکزی در سطح فلز تولید می‌شوند.

در کارهای قبلی از جریان سطحی ناشی از شکسته شدن تقارن مرکزی در سطح، صرفنظر می‌شد در حالیکه در صورتی می‌توان از این جریان صرفنظر کرد که در محدوده طول موجهای بلند بررسی انجام شود و میدان در بازه حرکتی الکترون تغییر چشمگیری نداشته باشد. برای تخمین میزان هارمونیک دوم تولیدی از جریانهای عمودی و موازی سطح، دو پارامتر  $a$  و  $b$  بدین صورت معرفی شد:

$$P_z^s(2\omega) \propto a(\omega)E_z(\omega)E_z(\omega)$$

$$P_x^s(2\omega) \propto b(\omega)E_x(\omega)E_z(\omega)$$

با مقادیر  $1 \approx |b|$  و  $a \approx 1$ . این شیوهی پارامترگذاری در کارهای آینده نیز بکار گرفته شد. کارهای بعدی نشان دادند که مقدار  $a$  از  $1 \approx a$ ، بیشتر است. استفاده از تئوری کوانتومی وبر و لایبچ<sup>۱</sup> نشان داد که قطع<sup>۲</sup> ناگهانی چگالی بار در سطح، خطای جدی‌ای برای محاسبه جریان عمودی غیرخطی سطح، ایجاد می‌کند. آنها خطایی برابر ۱ تا ۲ مرتبه بزرگتر را پیش‌بینی کردند [۱۳].

آزمایشاتی که توسط کوایل و سیمون<sup>۳</sup> بر روی سطح آلومینیوم/شیشه و نقره/شیشه، انجام شد، مقادیر کمتری برای  $a$  داد که نشان می‌داد تولید هارمونیک دوم در سطح فلز/شیشه، به نسبت کمتر از سطح فلز/خلأ است [۱۴].

در کاری که لایبچ و سائیج<sup>۴</sup> در سال ۱۹۸۹ با رویکرد تابع چگالی وابسته به زمان<sup>۵</sup> انجام دادند، رفتار  $a$  به صورت تابعی از  $\omega$  بررسی شد و مقدار  $-36-9i$  برای  $a$  در فرکانس  $1.17eV$  بدست آمد [۱۵]. در کار تجربی‌ای که مورفی و همکارانش<sup>۶</sup> در سال ۱۹۸۹ انجام دادند، بررسی رفتار توان هارمونیک دوم تولیدی از  $Al(111)$  به صورت تابعی از قطبش نور فرودی (در زوایای برخورد بزرگ) و زاویه برخورد، تأیید کننده مقدار بدست آمده برای  $a$  با روش تابع چگالی وابسته به زمان بود [۱۶]. در واقع این آزمایش‌ها نشان داد در زوایای برخورد بزرگ هارمونیک دوم تولیدی از خلأ/ فلز عمدتاً ناشی از جریان سطحی عمودی است اما علی‌رغم همخوانی خوبی که بین نتایج تجربی و تئوری پاسخ هارمونیک دوم در راستای عمود بر سطح وجود داشت، در زوایای کوچک برخورد (جایی که اثرات ناهمسانگردی خود را نشان می‌دهد) تفاوت آشکاری مشاهده شد.

<sup>۱</sup> Weber & Liebsch

<sup>۲</sup> cutoff

<sup>۳</sup> Quail & Simon

<sup>۴</sup> A.Liebsch & W.L.Schaich

<sup>۵</sup> Time dependent density function

<sup>۶</sup> Murphy et al.

ناهمسانگردی چرخشی اولین بار از سطح فلزات در سال ۱۹۸۶ [۱۷] و قبل از آن از سطح نیمه هادی ها مشاهده شده بود [۱۹ و ۱۸].

ناهمسانگردی سمتی<sup>۱</sup> از سطوح فلزات مختلف مشاهده شده است. در این میان توجه ویژه‌ای به  $Al(111)$  جلب شد. از آنجا که آلومینیوم فلزی با الکترونهای تقریباً آزاد و سطح (111)، سطحی بسیار هموار است؛ ناهمسانگردی شدیدی که در هارمونیک دوم تولیدی دیده می‌شود در نگاه اول بسیار عجیب به نظر می‌رسد [۱۶ و ۲۰]. این نتایج تجربی چنین نشان می‌دهد که حتی در مورد آلومینیوم نیز هارمونیک دوم تولیدی، پتانسیل شبکه را درک می‌کند (پتانسیل متناوب شبکه باعث ایجاد نوارهای انرژی<sup>۲</sup> مجاز در ماده می‌شود) و بدین ترتیب لزوم استفاده از روشی که در آن ساختار نواری ماده وارد شود، واضح است. ناهمسانگردی سمتی، که تنها به دلیل گذارهای بین باندهای حجمی و یا سطحی بوجود می‌آید؛ در فلزات با در نظر گرفتن فلز به صورت گاز الکترونی همگن در عدم حضور اختلال، در نظر گرفته نمی‌شد. یافتن پاسخ هارمونیک دوم با در نظر گرفتن ساختار نواری برای ماده، تابش دوقطبی سطحی و چهار قطبی حجمی، در مورد مواد دارای تقارن وارونی توسط پتخوف و لایبیج<sup>۳</sup> در سال ۱۹۹۳ انجام شد [۲۱]. آنها برای محاسبه هارمونیک دوم تولیدی از فلز آلومینیوم، مدل الکترونی دوباندی را به دلیل همخوانی خوب این مدل با روشهای دقیق‌تر محاسبه‌ی ترازهای انرژی، انتخاب کردند. نتایج محاسبات آنها برای هارمونیک دوم همسانگرد و ناهمسانگرد تولیدی، همخوانی بسیار خوبی با نتایج تجربی داشت به طوری که در سالهای اخیر نیز این نتایج به عنوان مرجع اصلی مقالات تولید هارمونیک دوم از فلزات ساده مورد استفاده قرار می‌گیرد. در سال ۱۹۹۴، ایشیدا و لایبیج<sup>۴</sup> با استفاده از مدل سطوح پله‌ای، به بررسی پاسخ ناهمسانگردی آلومینیوم پرداختند [۲۲].

در سال ۱۹۹۵ پتخوف و لایبیج، اثر تولید هارمونیک دوم را روی  $Al(111)$  بررسی کردند [۲۳]. در اینجا هم از مدل دوباندی استفاده کردند و توزیع فضایی جریان غیرخطی سطح آلومینیوم را بررسی نمودند. پتانسیلی که برای سطح در نظر گرفته شد، پتانسیل لانگ-کوهن بود [۱۱].

## ۲-۱ زمینه‌های کاربردی

از بین پدیده‌های غیرخطی که پس از اختراع لیزر در سال ۱۹۶۱ مشاهده شد و مطالعه بر روی آنها آغاز و همگام با پیشرفت تکنولوژی لیزر بر قدرت آن افزوده شد؛ تولید هارمونیک دوم به شکل ویژه‌ای مورد توجه قرار گرفت. دلیل این توجه

<sup>۱</sup> Azimuthal anisotropy

<sup>۲</sup> Energy bands

<sup>۳</sup> A.V.Peukhov & A.Liebsch

<sup>۴</sup> H. Ishida & A. Liebsch

ویژه را می توان نتیجه حساسیت بالای این اثر به تقارن های موجود در کریستال ونیز بالاتر بودن شدت آن نسبت به سایر پدیده های غیرخطی دانست.

در دهه ی ۱۹۸۰ تولید هارمونیک دوم به عنوان ابزاری جهت بررسی سطح و مولکولهای جذب شده ی سطحی به کار گرفته شد و در سال ۱۹۸۹ به کارگیری هارمونیک دوم به عنوان آشکارسازی برای مغناطش سطح پیشنهاد داده شد.

راه های بسیاری جهت مطالعه سطوح وجود دارد. به عنوان نمونه برای بررسی خواص مغناطیسی سطوح تمیز از پراش الکترونیهای کم انرژی اسپین-پلاریزه<sup>۱</sup> و اسپکتروسکوپی کاهش انرژی الکترونیهای اسپین-پلاریزه می توان استفاده کرد. اما مشکلی که در استفاده از الکترونها(پلاریزه) برای مطالعه بین سطوح وجود دارد طول پیمایش آزاد<sup>۲</sup> کوتاه الکترونها در ماده است. در حالیکه در فیلم های نازک فلزی سطوح میانی<sup>۳</sup> با نور قابل دسترسی اند و استفاده از یک روش اپتیکی برتری خواهد داشت.

به عنوان یک روش اپتیکی، اثر اپتیکی کر<sup>۴</sup> بطور گسترده مورد استفاده قرار گرفت. اساس اثر مغناطو(الکترو)- اپتیکی کر<sup>۵</sup> تغییر پذیرفتاری خطی ماده به صورت تابعی از میدان مغناطیسی(الکتریکی) اعمالی است. اثر این تغییر به طور تجربی، در چرخش قطبش نور بازتابی یا عبوری نسبت به پرتوی فرودی دیده می شود ( بازتابی: اثر کر و عبوری: فارادی). تجربه تابعیت چرخش قطبش به مغناطش خالص ماده (نه میدان اعمالی) را نشان داده است [۲۴]. بدین ترتیب میتوان از این اثر به عنوان یک آشکارساز مغناطش ماده (که عملاً به طور گسترده ای به کار می رود) استفاده نمود. علی رغم حساسیت بالا و کاربرد فراوان این اثر برای تک لایه ها، اثر مغناطو-اپتیکی کر (MOKE)<sup>۶</sup> شاخصی برای سطوح میانی<sup>۷</sup> نیست [۲۵].

تولید هارمونیک دوم به عنوان یک پدیده اپتیک غیرخطی و حساس به تقارن های موجود، به عنوان آشکارساز سطوح میانی (با توجه به شکسته شدن تقارن در مرز لایه های دارای تقارن مرکزی) به کار برده می شود. به رغم شناخت تولید هارمونیک دوم به عنوان یکی از اولین اثرات اپتیک غیرخطی پس از اختراع لیزر، تقریباً دو دهه بعد، تولید هارمونیک دوم به عنوان ابزاری برای بررسی های سطح به کار گرفته شد در حالی که در یکی از کارهای اولیه بلومبرگن<sup>۸</sup> اثرات احتمالی سطح بررسی شده

<sup>۱</sup> Spin-polarized low-energy electron diffraction

<sup>۲</sup> Mean free path

<sup>۳</sup> Interfaces

<sup>۴</sup> Optical Kerr effect

<sup>۵</sup> Magneto-(Electro)-optic Kerr effect

<sup>۶</sup> Magneto-optical Kerr effect

<sup>۷</sup> Interfaces

<sup>۸</sup> Bloembergen

بود [۲۶]. سرانجام با گسترش علم بررسی سطح و فعالیت گروه کاری شن<sup>۱</sup> در برکلی دید دانشمندان نسبت به اثرات غیرخطی از یک اثر کوچک و در حداقل اهمیت، تغییر یافت.

دامنه کاربرد هارمونیک دوم به مطالعه ساختار و تقارن‌های سطوح و سطوح میانی، مولکولهای جذب شده سطحی [۲۸ و ۲۷] (در اغلب موارد با افزایش میزان مولکولهای جذب شده، مانند  $O_2$ ,  $CO$  هارمونیک دوم تولیدی کاهش می یابد)، بررسی دینامیک اسپین در مرز بین لایه‌های فلزی و نیمه هادی [۲۹]، آشکارسازی مغناطش سطح [۳۰] و تصویربرداری از حوزه های مواد آنتی فرو [۳۱] و فیلم های گارنت [۲۵] گسترش یافته است.

برای استفاده از هارمونیک دوم به عنوان یک آشکارساز، لازم است رفتار ماده ی مورد بررسی و سهم سطح و حجم ماده در هارمونیک دوم تولیدی شناخته شده باشد.

ما در این پایان نامه پاسخ اپتیکی غیرخطی  $Al(111)$  را با دو مدل دوباندی و تابعی چگالی، بدست آورده و نتایج دو مدل را با هم و همچنین با نتایج تجربی، مقایسه می کنیم. برای این منظور در فصل دوم روش به دست آوردن پاسخ اپتیک غیرخطی را شرح می دهیم. در فصل سوم به توصیف مدل دوباندی و تئوری تابعی چگالی پرداخته، نمودار تغییرات پاسخ اپتیک غیرخطی نسبت به فاصله از لبه سطح و نوارهای انرژی  $Al(111)$  را رسم می کنیم. در فصل چهارم با مقایسه نتایج دو روش، همخوانی دو مدل و همخوانی داده های تجربی و نتایج تئوری به دست آمده برای این موضوع را نشان می دهیم.

---

<sup>۱</sup> Shen