

بررسی اثر ضخامت نانوپوسته‌های طلا و نقره با قطر خارجی مشخص در تشدید پلاسمون سطحی جایگزیده توسط روش FDTD

حمزه ظفیری، پیمان صاحب‌سرا، مهدی ترابی و مهدی رنجبر

دانشکده فیزیک، دانشگاه صنعتی اصفهان، اصفهان

پست الکترونیکی: sahebsara@cc.iut.ac.ir

(دریافت مقاله: ۱۳۹۷/۱۲/۲۲؛ دریافت نسخه نهایی: ۱۳۹۸/۰۵/۰۱)

چکیده

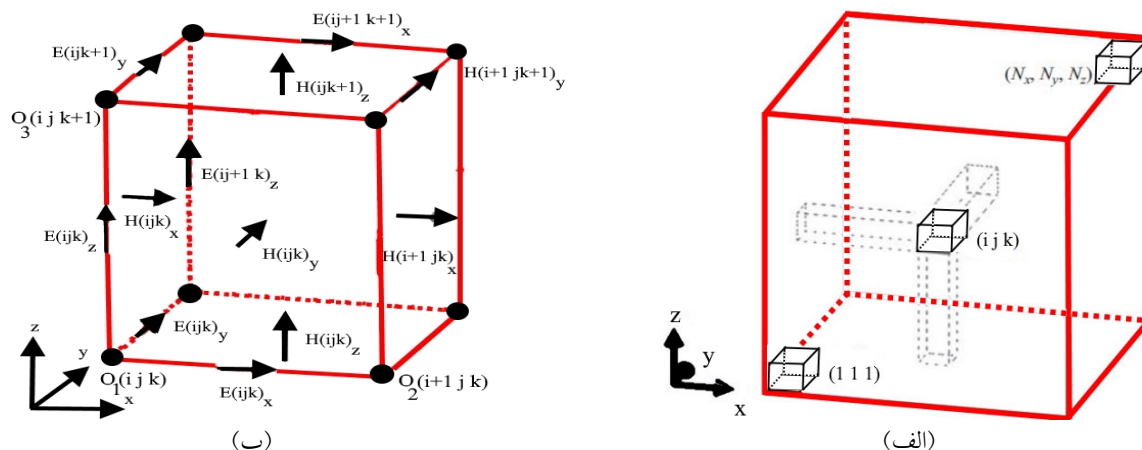
در این پژوهش، طیف تشدید پلاسمون سطحی جایگزیده برای نانوذرات کروی منفرد طلا با شعاع ۲۰ تا ۵۵ نانومتر، در محیط‌های با ضریب شکست متفاوت (۱ تا ۱/۸) با استفاده از روش تفاضل محدود در حوزه زمان شبیه‌سازی شده است. بسامد تشدید پلاسمونی با در نظر گرفتن مش‌بندی مناسب با بیشترین تطبیق بر نظریه مای برای هر ذره مشخص شده است و با استفاده از نتایج این شبیه‌سازی‌ها، خواص پلاسمونی نانوپوسته‌های طلا (نقره) با ضخامت‌های متفاوت در محیط با ضریب شکست هوا (۱) و آب (۱/۳۳) بررسی شده است. سپس بسامد تشدید پلاسمون برای نانوپوسته‌ها محاسبه شد و نتیجه گرفتیم در محیط‌های مختلف، نانوپوسته طلا (نقره) با شعاع خارجی ۲۰ نانومتر و ضخامت ۱۲ (۱۷) نانومتر دارای طیف پلاسمونی منطبق بر نانوکره طلا (نقره) با همان شعاع خارجی است. سپس جابه‌جایی قله تشدید پلاسمون سطحی جایگزیده برای هر نانوذره نسبت به تغییر ضریب شکست محیط رسم شده است. در پایان حساس‌ترین و غیرحساس‌ترین نانوذره نسبت به تغییرات ضریب شکست برای محیط‌های مختلف تعیین شده است

واژه‌های کلیدی: پلاسمون سطحی، نانوذرات طلا، نانوحسگر، تفاضل محدود در حوزه زمان

۱. مقدمه

سطح مشترک یک رسانا و دی‌الکتریک و محدود شدن در مختصات وابسته را انتشار پلاسمون پلاریتون سطحی (SPP) گویند. به عبارت دیگر جفت شدن میدان الکترومغناطیس با نوسانات پلاسمای الکترونی یک رسانا موجب برانگیختن SPP می‌شود. پلاسمون طبق تعریف یک شبه‌ذره بوزونی برانگیخته نشأت گرفته از نوسان پلاسمونی کوانتومی است. تشدید پلاسمون سطحی جایگزیده (LSPR) که ناشی از نوسانات

خاصیت پلاسمونی مواد نشأت گرفته از بررسی میدان‌های اپتیکی در اندازه نانو (نانواپتیک) است. نانواپتیک علت محدود شدن یک میدان الکترومغناطیس در محیطی با ابعاد هم مرتبه با طول موج و یا کوچک‌تر را توضیح می‌دهد. برای بررسی رفتار فلزات در حضور میدان الکترومغناطیس می‌توان از مدل پلاسمای استفاده کرد [۱]. انتشار برانگیختگی‌های الکترومغناطیسی در



شکل ۱. (رنگی در نسخه الکترونیکی) فضای مسئله به N_x ، N_y و N_z سلول واحد تقسیم بندی شده است (شکل (الف)). موقعیت مؤلفه‌های میدان الکتریکی و مغناطیسی با مبدأ مختصات $O_1(i, j, k)$ ، هر سلول دارای یک مبدأ مشخص و سه مؤلفه میدان الکتریکی و سه مؤلفه میدان مغناطیسی است (شکل (ب)) [۷].

(Δn) نانوذره‌ای که جابه‌جایی طول موج تشدید بیشتری داشته باشد به تبع دارای RIS بیشتر نیز خواهد بود.

روش تفاضل محدود در حوزه زمان (FDTD) روشی محاسباتی و قدرتمند جدید برای حل عددی معادلات دیفرانسیل ماکسول از طریق مدل‌سازی الکترومغناطیسی است. این روش در ابتدا توسط یی^۱ معرفی شد. از این روش برای محاسبه مؤلفه‌های میدان الکترومغناطیسی استفاده می‌شود که قادر به حل بسیاری از مسائل، به خصوص هندسه‌های غیرکروی در این حوزه است.

این روش در بررسی خواص الکتریکی و مغناطیسی حجم‌های هندسی دارای تقارن کم یا نامتقارن و مواد با ساختار ناهمگن بسیار کارآمد است. در این روش جزء اساسی سلول «یی» است. آن گونه که در شکل ۱ مشاهده می‌شود بر روی یال‌های سلول یی سه مؤلفه میدان الکتریکی، و عمود بر وجه آن سه مؤلفه میدان مغناطیسی قرار دارد. در فضای مسئله به N_x ، N_y و N_z سلول واحد یی تقسیم‌بندی می‌شود که موقعیت هر سلول با سه مختصه i, j, k مشخص می‌شود [۷ و ۸].

مؤلفه x میدان مغناطیسی در روش FDTD با استفاده از معادلات ماکسول وابسته به زمان، وابسته به دیگر مؤلفه‌های میدان الکتریکی بستگی دارد و به صورت رابطه زیر نوشته می‌شود:

جمع‌ی الکترون‌های نیمه آزاد است، در نانوذرات فلزاتی همچون طلا و نقره دارای خواصی جالب برای استفاده در کاربردهای حسگری است [۲]. بسامد تشدید پلاسمون برای یک نمونه تحت تأثیر میدان الکترومغناطیسی، وابستگی زیادی به جنس ماده، اندازه، شکل، فاصله بین نانوذرات و نحوه ترکیب آنها دارد [۳]. بسامد تشدید پلاسمون علاوه بر تأثیرپذیری بسیار از خواص نانوذره، وابستگی بسیاری به تابع دی‌الکتریک محیط اطراف ذره نیز دارد، چنان که تغییر کوچک در ضریب شکست محیط، باعث جابه‌جایی در بسامد تشدید پلاسمون می‌شود. این خاصیت اساس کار LSPR است [۴]. از کاربردهای حسگر پلاسمونی می‌توان استفاده آنها را در شناسایی گازهایی چون اکسیژن، گازهای سمی، گازهای گلخانه‌ای و هیدروژن، نام برد [۵]. نانوحسگرهای پلاسمونی پردازنده اپتیکی، دقیق و ابزاری قدرتمند برای شناسایی گازها هستند. نسبت جابه‌جایی طول موج تشدید به تغییر ضریب شکست (RI) محیط را، حساسیت ضریب شکست (RIS) می‌نامند که مطابق رابطه (۱) معرفی می‌شود [۶].

$$RIS = \frac{\Delta \lambda_{\max}}{\Delta n} \quad (1)$$

RIS ملاکی برای سنجش حساسیت حسگر نسبت به تغییرات محیط اطراف است. در بازه‌های برابر، تغییر ضریب شکست

(۲۹) فلز نجیب گفته می‌شود. فلزات نجیب در ساختار الکتریکی خود در لایه آخر الکترونی دارای نوار d پر شده هستند [۱۲]. در چند دهه اخیر نانوذرات طلا (Au) عنوان تحقیقات بسیار و به سرعت در حال رشد بوده است. برای مثال نانوذرات طلا با اندازه کوچک در کاربردهای زیست پزشکی همچون حسگری [۱۳]، تصویربرداری از بافت سلولی [۱۴]، تزریق دارو [۱۵] و درمان سرطان [۱۶] خواص جالب و بسیار مورد علاقه دارد. با این وجود حجم بیشتر تلاش‌های تحقیقاتی متوجه خواص شیمیایی و کاتالستی [۱۷]، الکتریکی [۱۸] و فرآیندهای اپتیکی غیر خطی است [۱۹]. وجود سه دلیل عمده سبب ترجیح نانوذرات طلا در زمینه‌های تحقیقاتی نسبت به دیگر نانوذرات شده است [۲۰].

۱. پایداری شیمیایی و فیزیکی: نجیب بودن طلا باعث می‌شود واکنش‌های فیزیکی و شیمیایی ذرات طلا همچون اکسیداسیون نسبت به سایر فلزات به خصوص در اندازه نانو به شدت کم باشد.

۲. سازگاری زیستی: نانوذرات طلا علاوه بر این که خود خاصیت سمی ندارند، اکسیدها و ترکیبات ایجاد شده احتمالی از آن نیز در بیشتر موارد بی خطر است. در نتیجه وجود و یا تزریق آن در بافت‌های سلولی و زنده ایجاد خطر نمی‌کند.

۳. خواص اپتیکی وابسته به پلاسمون‌های سطحی: تعداد بالای الکترون‌های رسانش موجب قطبش پذیری آسان آنها و اندرکنش با میدان الکترومغناطیسی خارجی با سطح نانوذرات می‌شود، به گونه‌ای که نانوذرات طلا دارای قطر کمتر از ۲ نانومتر نزدیک به صد در صد نور فرودی را توسط جذب پلاسمونی به گرما تبدیل می‌کند.

۲. شبیه‌سازی نانو ساختارها

اثر برهم‌کنش‌های الکتریکی در رساناها به دلیل وجود چگالی بالای حاملان آزاد بار در مقایسه با برهم‌کنش‌های گرمایی در سطوح انرژی، بیشتر است. به همین دلیل مرتبه ساختارهای نانو فلزی تا زمانی که کمتر از ۱ نانومتر نباشند، می‌توانند بدون نیاز به کوانتوم شرح داده شوند. در این پژوهش برای حل معادلات

$$H_{x(ijk)}^{n+\frac{1}{2}} = H_{x(ijk)}^{n-\frac{1}{2}} + \frac{\Delta t}{\mu \Delta z} \left(E_{y(ijk)}^n - E_{y(ijk-1)}^n \right) - \frac{\Delta t}{\mu \Delta y} \left(E_{z(ijk)}^n - E_{z(ij-1k)}^n \right), \quad (2)$$

طبق معادله بالا مقدار میدان مغناطیسی مجهول فعلی $\left(H_{x(ijk)}^{n+\frac{1}{2}} \right)$ به مقدار میدان مغناطیسی در زمان گذشته $\left(H_{x(ijk)}^{n-\frac{1}{2}} \right)$ و نیز میدان الکتریکی در زمان گذشته $\left(E^n \right)$ مربوط است. Δt بازه زمانی و Δx ، Δy ، Δz فاصله نقاط مبدأ را مشخص می‌کند. μ نیز تراوایی مغناطیسی است. به طریق مشابه معادلات وابسته به زمان برای دیگر مؤلفه‌های میدان مغناطیسی و نیز میدان الکتریکی برای هر سلول واحد نوشته می‌شود. اطلاعات بیشتر در مرجع [۸] آمده است.

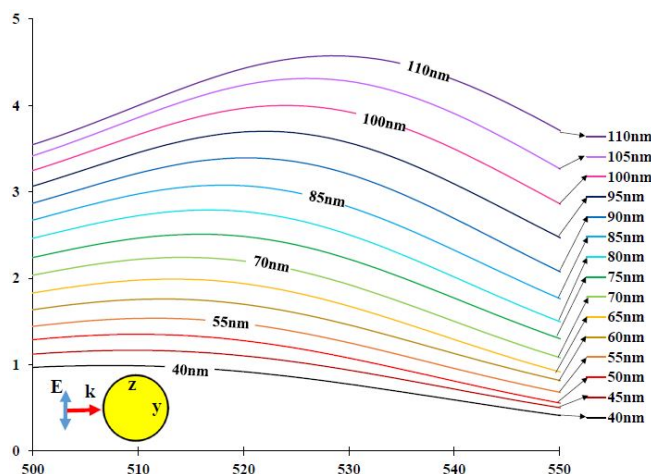
برای بررسی تحلیلی رفتار نانوذرات در حضور میدان الکترومغناطیس از نظریه مای^۱ و یا بسط شبه کروی استفاده می‌شود. نظریه مای یک روش تفکیک متغیرها برای تعیین ضرایب مای است. تعمیم‌های متنوعی از نظریه مای وجود دارند که مسائل مختلفی را تحت پوشش قرار می‌دهند. بسط چند قطبی میدان‌های الکترومغناطیسی مبنای محاسبات مای را تشکیل می‌دهد. مای با مرتبط ساختن مختصات دکارتی و قطبی کروی به واسطه مقادیر استوکس، رفتار امواج کروی پراکنده را بر حسب امواج تخت ورودی مورد بررسی قرار داد. از نتایج این بررسی‌ها می‌توان محاسبه ضریب سطح مقطع جذب و پراکندگی در روابط (۳) و (۴) را نام برد که I_{inc} شدت ورودی و P نشان دهنده توان جذب شده و پراکنده از سطح ذره است (به پیوست الف مراجعه شود) [۹ - ۱۱].

$$Q_{abs} = \frac{P_{abs}}{I_{inc}}, \quad (3)$$

$$Q_{sca} = \frac{P_{sca}}{I_{inc}}. \quad (4)$$

در علم فیزیک به خصوص فیزیک اتمی، تعریف مسلمی برای فلزات نجیب وجود دارد. در این شاخه از فیزیک فقط و فقط به طلا (عدد اتمی ۷۹)، نقره (عدد اتمی ۴۸) و مس (عدد اتمی

۱. Mie theory



شکل ۲. (رنگی در نسخه الکترونیکی) این شکل، Q را بر حسب طول موج، برای نانوذرات کروی طلا در محیطی با ضریب شکست ۱ نشان می‌دهد (ترتیب نانوذرات برای این نمودار و تمامی نمودارهای ۱ تا ۷ از پایین به بالا ۴۰، ۴۵، ۵۰، ۵۵، ۶۰، ۶۵، ۷۰، ۷۵، ۸۰، ۸۵، ۹۰، ۹۵، ۱۰۰، ۱۰۵، ۱۱۰، ۱۱۵، ۱۲۰ نانومتر است).

حداقل برسد. حداکثر اختلاف طول موج قله تشدید مدل شبیه‌سازی با مدل تحلیلی ۵ نانومتر است. مرزهای محیط شبیه‌سازی تا آنجا که اثرات بازتابی را به حداقل برساند بزرگ انتخاب شدند. طول ابعاد مرزها از مرتبه ۱۰ برابر قطر نانوذرات است. حاصل جمع قدرمطلق سطح مقطع جذب و پراکندگی بهنجار شده، برای هر نانوذره را ضریب Q کلی می‌نامیم، که به اختصار Q می‌نویسیم. نمودار Q بر حسب طول موج برای نانوذرات ۴۰ تا ۱۱۰ نانومتر کروی طلا در محیط‌های با ضریب شکست متفاوت مطابق شکل ۲ تا ۶ رسم شدند و الگوی افزایش طول موج تشدید برای نانوذرات مورد بررسی قرار گرفت. Q استفاده شده در این پژوهش همان مفهوم Q خاموشی^۱ است. با توجه به شکل‌های ۲ تا ۶، روند تغییر ضریب شکست محیط در چهار بازه (۱ تا ۱/۲، ۱/۲ تا ۱/۴، ۱/۴ تا ۱/۶ و ۱/۶ تا ۱/۸) بررسی شد. سپس مقدار جابه‌جایی طول موج تشدید، نسبت به تغییرات ۰/۲ ضریب شکست، و در نهایت RIS، که از تقسیم تغییرات طول موج تشدید بر تغییرات RI به دست می‌آید، برای بعضی نانوذرات محاسبه شده است.

۱.۲. نتایج شبیه‌سازی

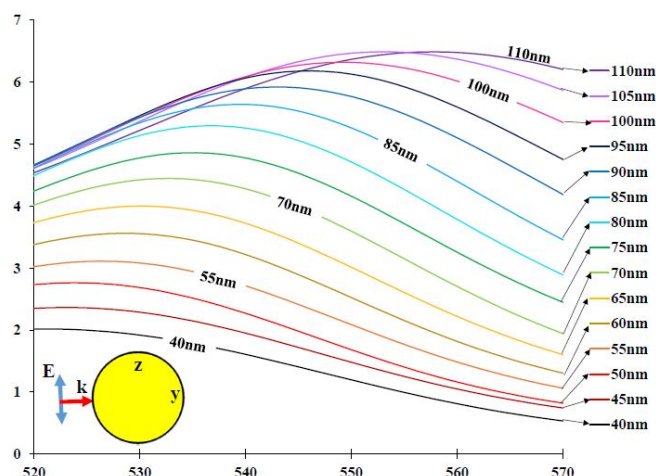
طبق نتایج به دست آمده در شکل ۲، وقتی نانوذرات طلا تحت تابش الکترومغناطیسی قرار گیرند، به دلیل نوسانات پلازما در

دیفرانسیل ماکسول از روش FDTD استفاده شده است. نرم‌افزارهای مورد استفاده جهت شبیه‌سازی، متلب و لومریکال هستند (جهت اطلاعات بیشتر به پیوست (ب) مراجعه شود)، در بررسی خواص پلاسمونی نانوذرات طلا (نقره) ارائه شده در این پژوهش از تابع دی‌الکتریک جانسون-کریستی استفاده شده است [۲۱].

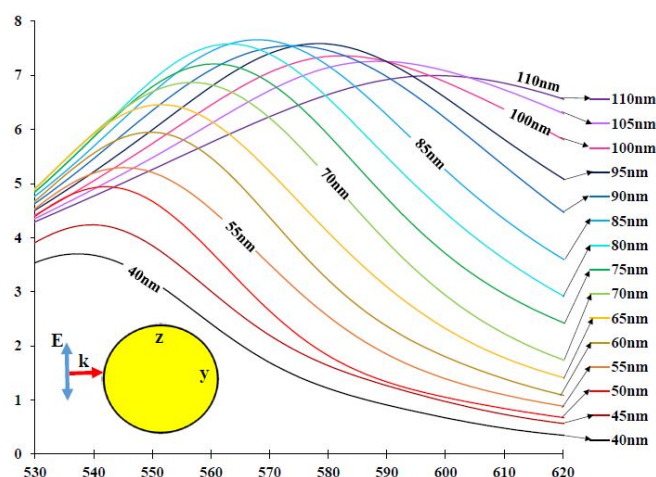
۱.۲. شبیه‌سازی برای ذرات کروی طلا

پانزده نانوذره طلا با قطر ۴۰ تا ۱۱۰ نانومتر، جداگانه در محیط‌هایی با ضریب شکست ۱ تا ۱/۸ تحت تابش موج پیشرونده در راستای محور z قرار گرفتند. چون پوشش‌های دی‌الکتریک پرکاربرد در نانوحسگرها، اغلب ضریب شکستی بین ۱ تا ۲، دارند، در این پژوهش ضریب شکست محیط برای نانوذرات کروی طلا در این بازه انتخاب شدند. چون تشدید پلاسمونی نانوذرات طلا در طول موج‌های ۵۰۰ تا ۶۰۰ نانومتر است، طول موج پرتو ورودی از ۳۰۰ تا ۸۰۰ نانومتر در نظر گرفته شد، تا شبیه‌سازی‌ها شامل قله تشدید پلاسمون در بازه تغییرات ضریب شکست محیط باشند. سپس طول موج تشدید پلاسمون سطحی جایگزیده برای هر نانوذره در محیط‌هایی با ضریب شکست ۱، ۱/۲، ۱/۴، ۱/۶، ۱/۸ به دست آمد. مش‌بندی به گونه‌ای بوده، که علاوه بر انطباق هر چه بیشتر نتایج شبیه‌سازی با نتایج تحلیلی، زمان محاسبات تا حد امکان به

۱. Q extinction



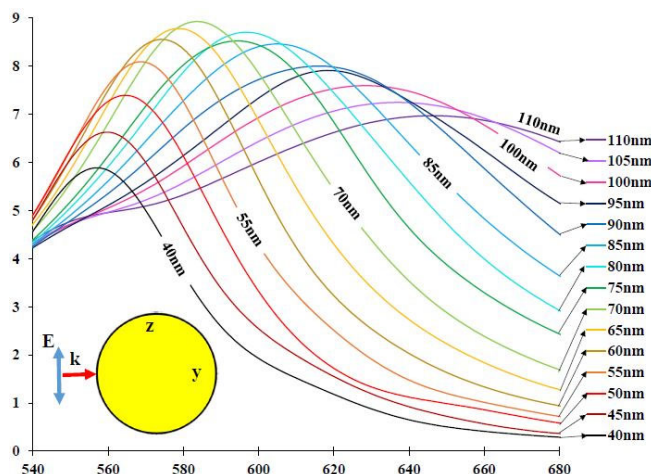
شکل ۳. (رنگی در نسخه الکترونیکی) این شکل، Q را بر حسب طول موج، برای نانوذرات کروی طلا در محیطی با ضریب شکست $۱/۲$ نشان می‌دهد.



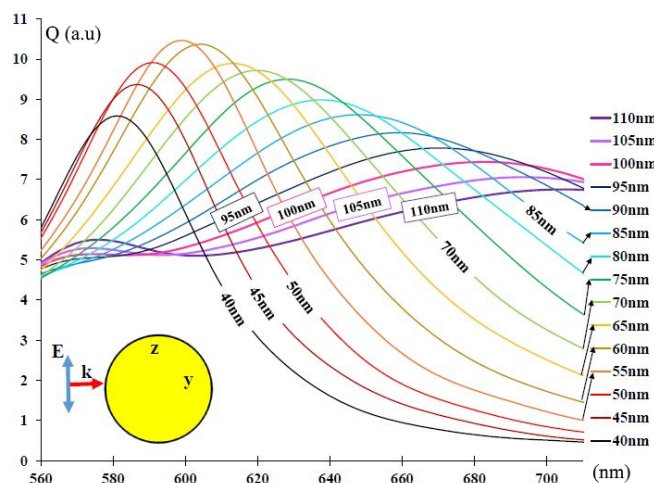
شکل ۴. (رنگی در نسخه الکترونیکی) این شکل، Q را بر حسب طول موج، برای نانوذرات کروی طلا در محیطی با ضریب شکست $۱/۴$ نشان می‌دهد.

نمودار Q بیشتر می‌شود. مطابق شکل ۴ برای نانوذرات در محیط با ضریب شکست $۱/۴$ ارتفاع قله پلاسمونی تا ذرات با ابعاد ۸۵ نانومتر افزایش و برای نانوذرات با ابعاد ۹۰ نانومتر و بیشتر کاهش می‌یابد و الگوی افزایش پهنای قله، همچنان برای تمام نانوذرات رعایت می‌شود. مطابق شکل ۵ در ضریب شکست $۱/۶$ با افزایش ابعاد نانوذره، پهنای قله برای تمام نانوذرات بیشتر می‌شود و ارتفاع قله برای ذرات تا ابعاد نانومتر افزایش و از ۸۰ تا ۱۱۰ نانومتر کاهش یافته است. الگوی جابه‌جایی سرخ برای قله پلاسمونی همچنان پا برجاست ولی در شکل ۶ برای نانوذرات در محیط با ضریب شکست $۱/۸$ ، افزایش ابعاد نانوذره تا ۵۵ نانومتر سبب افزایش ارتفاع قله پلاسمونی و افزایش ابعاد نانوذره از ۶۰ تا ۱۱۰ نانومتر سبب

طیف خاموشی خود دارای قله تشدید می‌شوند. ذره ۴۰ نانومتری کمترین طول موج تشدید و مقدار Q را دارد. با بزرگ‌تر شدن ابعاد نانوذره، طول موج تشدید پلاسمون و نیز مقدار Q افزایش می‌یابد (در تمامی شکل‌های ۲ تا ۸ قطر نانوذرات به ترتیب از بالا به پایین ۱۱۰، ۱۰۵، ۱۰۰، ۹۵، ۹۰، ۸۵، ۸۰، ۷۵، ۷۰، ۶۵، ۶۰، ۵۵، ۵۰، ۴۵، ۴۰ نانومتر است). با افزایش مقدار ضریب شکست محیط اطراف نانوذره، مطابق شکل ۳ روند ذکر شده ادامه می‌یابد و طول موج‌های تشدید برای تمام ذرات، جابه‌جایی سرخ دارند. الگوی جابه‌جایی سرخ مطابق شکل‌های ۴، ۵ و ۶ برای تمام نانوذرات با افزایش ضریب شکست محیط همچنان ادامه دارد، ولی به دلیل افزایش سهم پراکندگی با افزایش قطر نانوذرات و نیز افزایش اختلاف در طول موج تشدید جذب و پراکندگی پهنای



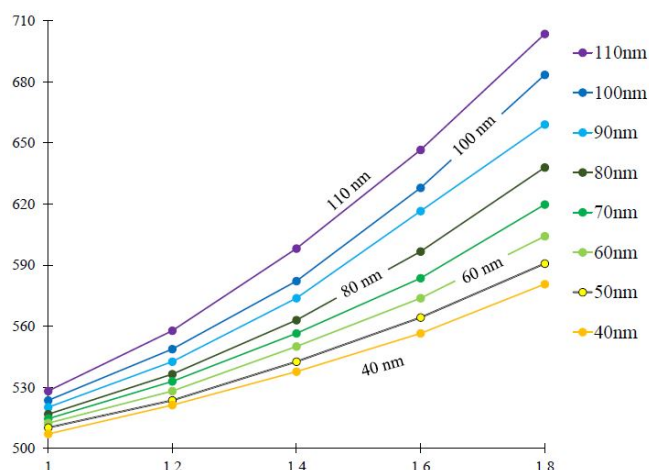
شکل ۵. (رنگی در نسخه الکترونیکی) این شکل، Q را بر حسب طول موج، برای نانوذرات کروی طلا در محیطی با ضریب شکست ۱٫۶ نشان می‌دهد.



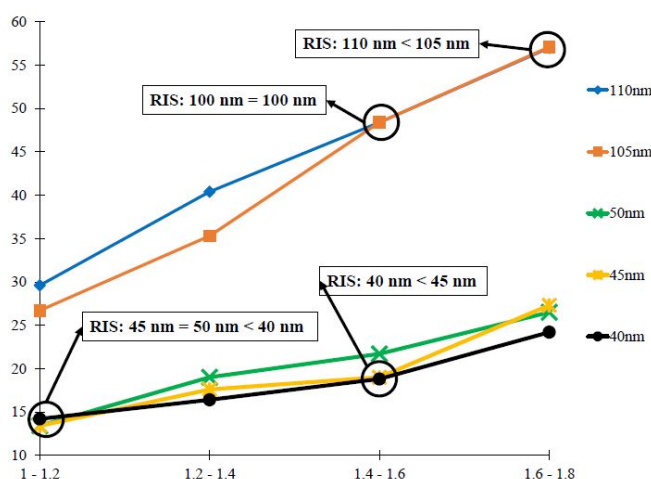
شکل ۶. (رنگی در نسخه الکترونیکی) این شکل، Q را بر حسب طول موج، برای نانوذرات کروی طلا در محیطی با ضریب شکست ۱٫۸ نشان می‌دهد.

سنجش حساسیت حسگرها نسبت به تغییرات محیط است، در شکل ۸ برای نانوذرات کروی ۴۰ تا ۱۱۰ نانومتر طلا رسم شده است، و در هر بازه از تغییرات RI محیط ذرات با بیشترین و کمترین RIS مشخص شدند. در انرژی‌های بیشتر و یا طول موج‌های کمتر پراکندگی سهم قابل ملاحظه‌ای دارد، همچنان که در انرژی‌های کمتر یا در طول موج‌های مطابق شکل ۸ در بازه ۱ تا ۱٫۲، ۱٫۴ تا ۱٫۶، ۱٫۶ تا ۱٫۸ برای تغییر ضریب شکست، به ترتیب بیشترین RIS متعلق به ذرات ۱۱۰، ۱۱۰، ۱۰۵ و ۱۰۵ نانومتر است و کمترین RIS به ترتیب متعلق به ذرات ۴۵ و ۵۰، ۴۰، ۴۰، ۴۰ نانومتر است. در قسمت اول شبیه‌سازی‌ها (شبیه‌سازی طیف پلاسمونی برای نانوذرات کروی طلا)، نتایج به دست آمده از روش FDTD، تحلیلی و

کاهش ارتفاع قله پلاسمونی شده است. الگوی افزایش جابه‌جایی سرخ برای طول موج تشدید، با افزایش ضریب شکست محیط و ابعاد نانوذرات همچنان پابرجاست. به دلیل افزایش قابل ملاحظه سهم پراکندگی برای ذرات با ابعاد ۱۰۰ تا ۱۱۰ نانومتر در محیط با ضریب شکست ۱٫۸، پهن شدگی قله تشدید پلاسمون، همراه با ایجاد قله دیگر در طول موج‌های کمتر نسبت به قله مطلق، خود را نمایان کرده است. در بیشتر اوقات، فارغ از این که نانوذرات طلا در چه محیطی باشند ضریب جذب سهم غالب را در طیف خاموشی دارد. مطابق شکل ۷ افزایش ابعاد نانوذره سبب افزایش طول موج تشدید می‌شود. در ادامه میزان تغییرات طول موج تشدید را نسبت به بازه‌های تغییر RI محیط مورد بررسی قرار دادیم. RIS که معیار



شکل ۷. (رنگی در نسخه الکترونیکی) در این شکل مکان قله تشدید پلاسمونی برای نانوذرات کروی طلا بر حسب ضریب شکست‌های ۱ تا ۱٫۸ رسم شده است.



شکل ۸. (رنگی در نسخه الکترونیکی) این شکل، مقدار تغییرات طول موج تشدید برای هر نانوذره را نسبت به تغییرات ضریب شکست محیط نشان می‌دهد.

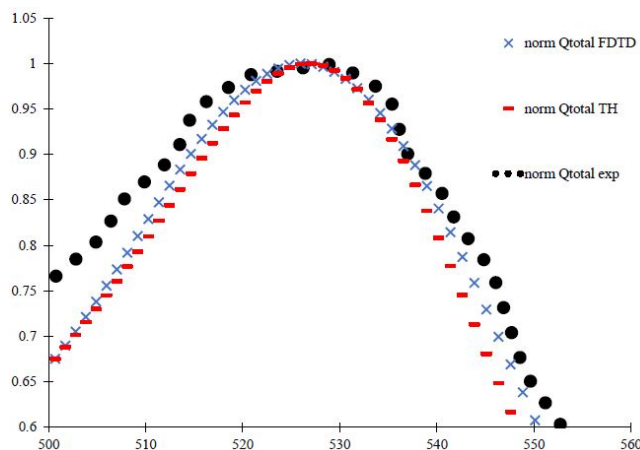
خارجی ثابت است، در ادامه شبیه‌سازی تنها روی نانوپوسته‌هایی از طلا (نقره) انجام می‌شود که شعاع خارجی ۴۰ نانومتر دارند. همچنین با توجه به اندازه نانوذرات از مش‌بندی و شرایط بهینه مورد استفاده برای نانوذرات کروی توپر طلا با قطر ۴۰ نانومتر در قسمت اول استفاده می‌شود.

ضرایب شکست محیط پیرامون از دو جهت این گونه انتخاب شدند، اول این که هوا و آب به عنوان محیط پیرامون نانوذره بلافاصله پس از سنتز، نقش بسزایی دارند؛ دوم به خاطر این که شبیه‌سازی از جهت مقایسه با نتایج سایر محققین دارای شاهد فیزیکی باشد. ضرایب شکست تا حد امکان بهتر است

تجربی (شکل ۹ مقایسه‌ای از طیف پلاسمونی Q عددی، Q تحلیلی و Q تجربی را بر حسب طول موج، برای نانوکره طلا با قطر ۲۵ نانومتر در محیطی با ضریب شکست ۱٫۳۳ نشان می‌دهد) همخوانی دارد [۲۲]. با مراجعه به شکل ۲ از مرجع ۲۲ می‌توان تصویر TEM و SEM نمونه نانوذرات کروی سنتز شده روی شیشه را مشاهده کرد.

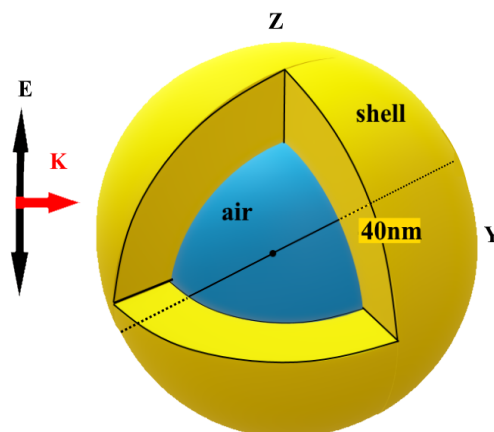
۱.۲.۲. شبیه‌سازی برای پوسته کروی طلا (نقره)

چون در این پژوهش هدف بررسی اثر ضخامت در تشدید پلاسمون سطحی جایگزیده نانوپوسته کروی طلا (نقره) با قطر



شکل ۹. (رنگی در نسخه الکترونیکی) این شکل مقایسه نتایج تحلیلی به دست آمده از نظریه مای و نتایج شبیه‌سازی شده از روش FDTD در این پژوهش را برای نانوذره طلا با قطر ۲۵ نانومتر در محیطی با ضریب شکست ۱٫۳۳ نشان می‌دهد. نمودارها مقدار Q بهنجار را بر حسب طول موج نشان می‌دهد. برچسب نمودارها به ترتیب از بالا به پایین مقادیر Q به دست آمده از روش محاسباتی، تحلیلی و تجربی Q را نشان می‌دهد.

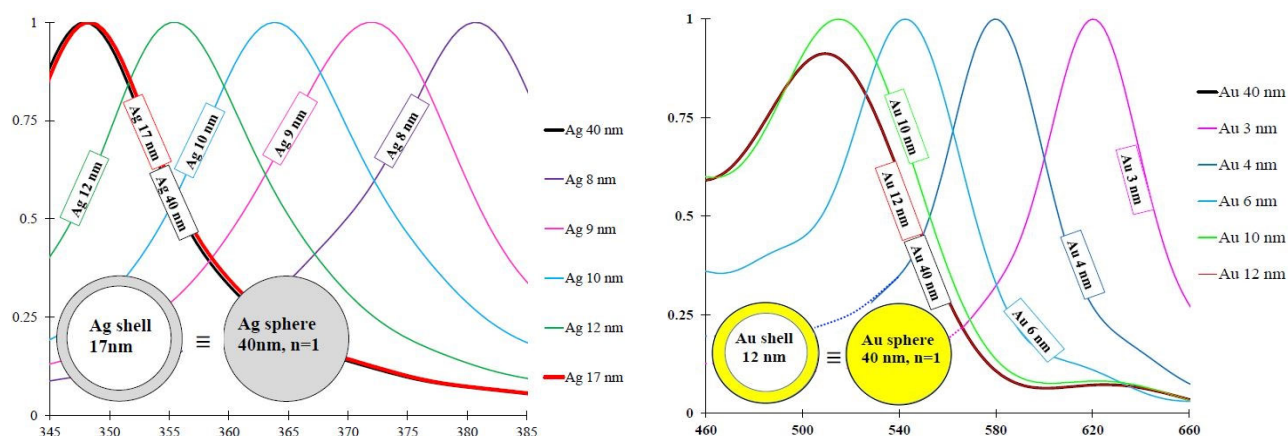
خارجی مشخص، ابتدا یک نانو کره طلا (نقره) با قطر ۴۰ نانومتر، در محیطی با ضریب شکست (RI) خالص (ضریب شکست خالص ۱ در نظر گرفته شد). و سپس محیطی با ضریب شکست آب (ضریب شکست آب در بازه طول موجی ۵۰۰ تا ۸۰۰ نانومتر ۱٫۳۳ در نظر گرفته شد).؛ تحت تابش یک موج الکترومغناطیسی پیش‌رونده در راستای مثبت محور Yها و قطبش خطی در راستای محور Zها در شبیه‌سازی قشد. موقعیت میدان نسبت به پوسته‌ها در شکل ۱۰ مشاهده می‌شود.



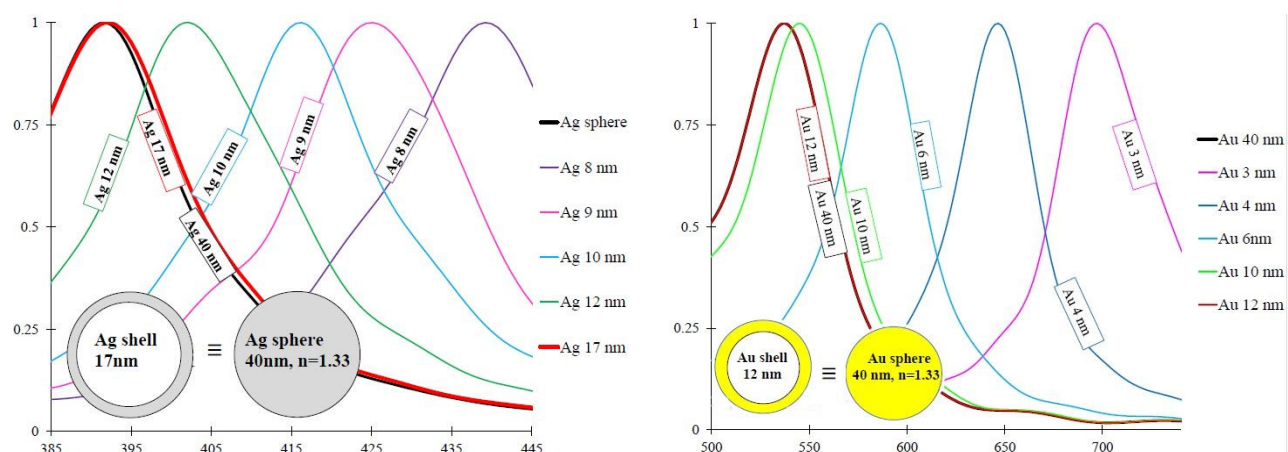
شکل ۱۰. (رنگی در نسخه الکترونیکی) پوسته کروی طلا (نقره) با قطر خارجی و ثابت ۴۰ نانومتر. ضریب شکست درون پوسته‌های کروی ۱ است. محیط پیرامون پوسته‌ها می‌تواند آب یا هوا باشد. قطبش میدان در راستای محور Zها و جهت انتشار در راستای محور Yها است.

مرحله بعد ایجاد یک فضای تو خالی کروی دارای شعاع ۱۹ نانومتر و دارای ضریب شکست ۱ درون این کره طلا (نقره) است، این فضای تو خالی هر بار از شعاعش کم می‌شود به گونه‌ای که پوسته ایجاد شده از طلا (نقره) قطر خارجی ثابت ۴۰ نانومتر و ضخامت‌های متغیر دارد. با تفاسیری که از مسئله شد اولین شبیه‌سازی روی نانوپوسته با ضخامت ۱ نانومتر طلا (نقره) و قطر خارجی ۴۰ نانومتر در محیط هوا و آب انجام شد. در ادامه ضخامت پوسته با فاصله‌های ۱ نانومتری افزایش یافته و در محیط آب و هوا طیف پلاسمونی مربوط به هر نانوپوسته طلا (نقره) محاسبه و رسم شد. این روند در دو محیط آب و هوا برای هر نانوپوسته تا جایی انجام می‌شود تا طول موج تشدید پلاسمون نانوپوسته بر طول موج تشدید پلاسمون نانوکره طلا (نقره) در آن محیط منطبق شود. دقت

جوری انتخاب شوند که منطبق بر ضریب شکست محیط‌های واقعی باشد. ضریب شکست پیشنهادی برای ادامه کار روی نانوپوسته‌های کروی با ضخامت متغیر و قطر خارجی ۴۰ نانومتر در این پژوهش ۱ و ۱٫۳۳ یعنی محدوده‌ای میان ۱ تا ۱٫۸ و دارای انطباق با ضریب شکست هوا و آب است. پس از اطمینان از روند درست شبیه‌سازی، در این پژوهش برای شبیه‌سازی ساختار نانوپوسته‌های طلا (نقره) با قطر



شکل ۱۱. (رنگی در نسخه الکترونیکی) این نمودار مقدار Q را بر حسب طول موج برای بعضی نانوپوسته‌ها و نانوکره طلا (شکل سمت راست)، نانوپوسته‌ها و نانوکره نقره (شکل سمت چپ) در محیط با ضریب شکست ۱ را نشان می‌دهد. (برچسب نمودارها به ترتیب از بالا به پایین، نانوکره طلا (نقره) با قطر ۴۰ نانومتر و نانوپوسته طلا (نقره) با ضخامت ۳ (۸) نانومتر تا ۱۲ (۱۷) نانومتر را نشان می‌دهد.)



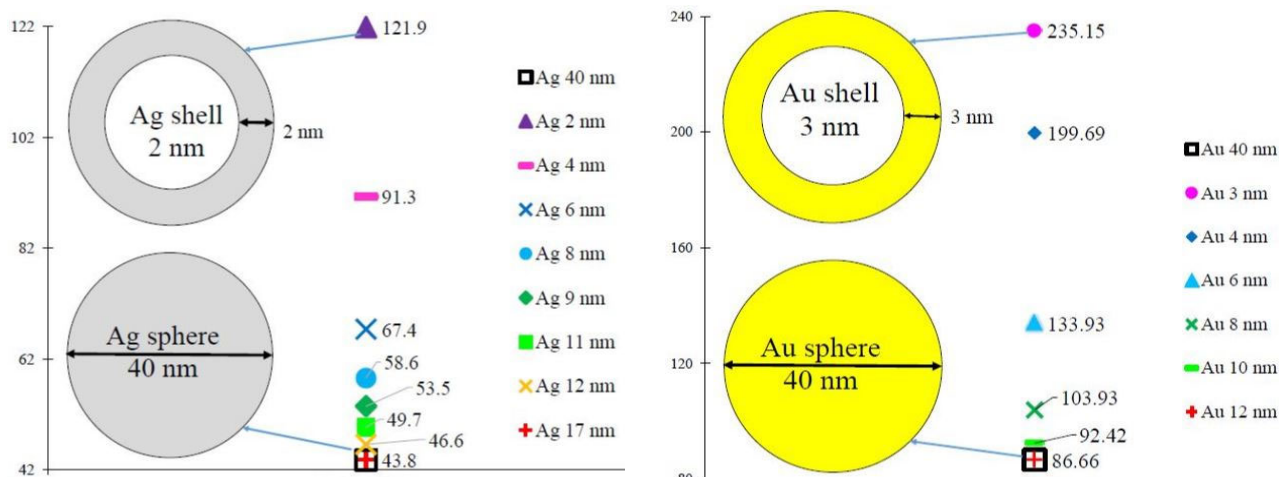
شکل ۱۲. (رنگی در نسخه الکترونیکی) این نمودار مقدار Q را بر حسب طول موج برای بعضی نانوپوسته‌ها و نانوکره طلا (شکل سمت راست)، نانوپوسته‌ها و نانوکره نقره (شکل سمت چپ) در محیط با ضریب شکست ۱/۳۳ را نشان می‌دهد. (برچسب نمودارها به ترتیب از بالا به پایین، نانوکره طلا (نقره) با قطر ۴۰ نانومتر و نانوپوسته طلا (نقره) با ضخامت ۳ (۸) نانومتر تا ۱۲ (۱۷) نانومتر را نشان می‌دهد.)

نمودارهای شکل ۱۱، اعدادی که بلافاصله بعد از Au (Ag) آمده‌اند ضخامت نانوپوسته طلا (نقره) را مشخص می‌کنند. به همین ترتیب برای نانوکره و نانوپوسته‌های درون آب نیز مقادیر Q کلی نسبت به طول موج در شکل ۱۲ رسم شده است.

نمودار Q نانوکره طلا (نقره) در محیط با ضریب شکست ۱/۳۳ منطبق بر نمودار Q پوسته کروی طلا (نقره) با ضخامت ۱۲ (۱۷) نانومتر است. جهت نمایان شدن بهتر خواص پلاسمونی نانوپوسته طلا (نقره) در کاربردهای حسگری، تغییر طول موج تشدید نانوپوسته‌ها نسبت به تغییر ضریب شکست

شود طیف‌های خاموشی رسم شده برای نانوذرات طلا (نقره) در شکل‌های ۱۱ و ۱۲ نسبت به بیشترین مقدار Q خود به‌همین‌جای هستند.

در شکل ۱۱ نمودار Q بر حسب طول موج برای نانوکره و بعضی نانوپوسته‌های کروی طلا (نقره) با گام ضخامت ۱ nm در محیط با ضریب شکست ۱ آمده است. طول موج تشدید پلاسمون نانوپوسته کروی طلا با ضخامت ۱۲ نانومتر و قطر خارجی ۴۰ نانومتر در این محیط با طول موج تشدید پلاسمون برای نانوکره طلا با قطر ۴۰ نانومتر انطباق دارد. در برچسب



شکل ۱۳. (رنگی در نسخه الکترونیکی) جابه‌جایی طول موج تشدید پلاسمون جایگزیده در بازه ۰٫۳۳٪ از تغییرات ضریب شکست برای نانوکره و نانوپوسته‌های طلا (شکل سمت راست)، نانوکره و نانوپوسته نقره (شکل سمت چپ) محاسبه و رسم شده است. برچسب نمودار به ترتیب از بالا به پایین نانوکره طلا (نقره) با قطر نانومتر ۴۰ و نانوپوسته طلا (نقره) با ضخامت ۳ (۲) نانومتر تا ۱۲ (۱۷) نانومتر را نشان می‌دهد.

۱۲، جابه‌جایی قرمز در طیف پلاسمونی همه نانوذرات مشاهده می‌شود. مطابق شکل ۱۲ الگوی افزایش طول موج تشدید همچنان با کاهش ضخامت نانوپوسته رعایت می‌شود. در محیط با ضریب شکست ۱٫۳۳ همچون محیط با ضریب شکست ۱ نانوپوسته طلا (نقره) با ضخامت بیشتر از ۱۲ (۱۷) نانومتر همان خواص پلاسمونی نانوکره ۴۰ نانومتری را دارد. از بررسی و مقایسه شکل‌های ۱۱، ۱۲ و ۱۳ می‌توان چنین نتیجه گرفت که فارغ از ضریب شکست محیط اطراف که عاملی تأثیرگذار در مشخصه‌یابی خواص پلاسمونی است، عامل ضخامت برای نانوپوسته‌های کروی طلا (نقره) با قطر خارجی ۴۰ نانومتر، تا زمانی در طیف جذبی و خواص پلاسمونی تأثیرگذار است که ضخامت نانوپوسته کمتر از ۱۲ (۱۷) نانومتر باشد. جهت بررسی خواص حسگری نانوپوسته‌های طلا (نقره)، جابه‌جایی طول موج تشدید برای نانوکره و نانوپوسته‌های طلا (نقره) با قطر خارجی ۴۰ نانومتر در بازه ۱ تا ۱٫۳۳ ضریب شکست مطابق شکل ۱۳ آمده است. برای نانوکره و نانوپوسته‌های طلا (نقره) با ضخامت ۳ (۲) تا ۱۲ (۱۷) نانومتر، مطابق شکل ۱۳ بیشترین RIS در بازه ۱ تا ۱٫۳۳ تغییر RI متعلق به نانوپوسته طلا

محیط اطراف از ۱ به ۱٫۳۳ مطابق شکل ۱۳ محاسبه شده است. به تنهایی می‌تواند ملاکی تأثیرگذار در تعیین نوع و محدوده کاربرد اپتیکی برای نانوپوسته‌های طلا با شکل و اندازه‌های متفاوت باشد.

۲.۲.۲. نتایج شبیه‌سازی

با افزایش شعاع یک حفره با گام‌های ۱ نانومتری درون نانوکره طلا (نقره) با قطر ۴۰ نانومتر و ایجاد نانوپوسته طلا (نقره) در محیطی با ضریب شکست ۱ مطابق شکل ۱۱، طیف پلاسمونی برای پوسته‌های کروی طلا (نقره) دارای ضخامت ۱۲ (۱۷) نانومتر و بیشتر، منطبق بر طیف و طول موج تحریک نانوکره ۴۰ نانومتری است. این انطباق خاصیت سطحی تحریک پلاسمون جایگزیده را تأیید می‌کند. حد ضخامت مؤثر برای نانوپوسته طلا (نقره) در محیط هوا ۱۲ (۱۷) نانومتر است. حد ضخامت مؤثر به ضخامتی از نانوپوسته گفته می‌شود که با افزایش آن طیف پلاسمونی نانوپوسته همواره دچار تغییر نشود.

کاهش ضخامت پوسته در محیط با ضریب شکست هوا، باعث افزایش طول موج تشدید نیز می‌شود. با تغییر ضریب شکست محیط اطراف از هوا (۱) به آب (۱٫۳۳) مطابق شکل

$$Q_{sca} = \frac{1}{x^2} \sum_{L=1}^{\infty} (2L+1) \left(|a_L|^2 + |b_L|^2 \right),$$

$$Q_{ex} = \frac{1}{x^2} \sum_{L=1}^{\infty} (2L+1) \operatorname{Re} \left(|a_L|^2 + |b_L|^2 \right).$$

در اینجا $x = \frac{2\pi r}{\lambda}$ و r و λ به ترتیب شعاع ذره و طول موج

پرتو فرودی است. a_L و b_L با روابط زیر داده می‌شوند:

$$a_L = \frac{\frac{S_L(x) S'_L(mx)}{S_L(mx)} - m S'_L(x)}{\frac{C_L(x) C'_L(mx)}{C_L(mx)} - m C'_L(x)},$$

$$b_L = \frac{m \frac{S_L(x) S'_L(mx)}{S_L(mx)} - S'_L(x)}{m \frac{C_L(x) C'_L(mx)}{C_L(mx)} - C'_L(x)},$$

m نسبت ضریب شکست ذره به ضریب شکست محیط اطراف و S_L ، C_L ، S'_L و C'_L بر حسب توابع کروی بسل j_L و y_L به صورت زیر نوشته می‌شوند:

$$S_L(z) = z j_L(z),$$

$$C_L(z) = -z y_L(z),$$

$$S'_L(z) = S_{L-1}(z) - \frac{L}{z} S_L(z),$$

$$C'_L(z) = C_{L-1}(z) - \frac{L}{z} C_L(z),$$

z در اینجا می‌تواند x یا mx باشد.

پیوست (ب)

نرم‌افزار لومریکال یک برنامه محاسباتی تخصصی جهت شبیه‌سازی برهم‌کنش میدان الکترومغناطیسی با اجسام دوبعدی و سه بعدی بر مبنای روش FDTD است. لومریکال شامل چهار زیر برنامه زیر است: (۱) دی‌وایس^۱ جهت طراحی اجسام اپتیکی خاص دوبعدی و سه‌بعدی همچون سلول‌های خورشیدی، (۲) سولژن روش تفاضل محدود در حوزه زمان^۲. جهت طراحی اجسام اپتیکی دارای تقارن و یا ساختارهای غیر پیچیده و شبیه‌سازی برهم‌کنش میدان الکترومغناطیسی با اجسام

(نقره) با ضخامت ۳ (۲) نانومتر و کمترین RIS متعلق به نانوپوسته با ضخامت ۱۲ (۱۷) نانومتر و نانوکره طلا (نقره) با قطر خارجی ۴۰ نانومتر است.

۳. جمع‌بندی

در این پژوهش، بسامد تشدید پلاسمون برای نانوذرات کروی طلا مشخص شد و نتیجه گرفتیم که نانوکرات طلا به دلیل دقت، حساسیت و الگودهی مناسب نسبت به تغییرات دی‌الکتریک محیط، می‌تواند حسگرهای مطلوبی باشند. برای قطره‌های مختلف نانوذرات طلا، بیشترین و کمترین RIS در محدوده ضریب شکست ۱ تا ۱/۸ مشخص شد. همچنین بررسی شد که افزایش قطر نانوذرات، سبب افزایش RIS، پهن شدن طیف، تقلیل، افزایش سهم پراکندگی و اختلاف در همپوشانی مکان قله جذب و پراکندگی می‌شود.

همچنین خواص پلاسמוنی نانوپوسته کروی طلا (نقره) با قطر خارجی ۴۰ نانومتر و ضخامت متفاوت در محیط با ضریب شکست ۱ و ۱/۳۳ بررسی و بسامد تشدید پلاسمون برای هر ذره مشخص شد و استنباط شد با کاهش ضخامت و یا افزایش RI محیط، طیف جذبی برای نانوپوسته‌های کروی دارای جابه‌جایی سرخ خواهد شد. سپس حد ضخامت مؤثر برای نانوپوسته طلا (نقره) در دو محیط آب و هوا بررسی و از آن، بی‌تأثیر بودن RI محیط اطراف در تعیین حد این ضخامت نتیجه شد. در پایان RIS در بازه ۱ تا ۱/۳۳ برای نانوپوسته‌های طلا (نقره) با قطر خارجی ۴۰ نانومتر محاسبه و حساس‌ترین و غیرحساس‌ترین نانوپوسته نسبت به تغییر RI محیط مشخص شد.

پیوست (الف)

Q_{sca} ، Q_{abs} و Q_{ex} به ترتیب ضرایب سطح مقطع پراکندگی، جذب و خاموشی هستند. رابطه این ضرایب با یکدیگر طبق معادله زیر نوشته می‌شود:

$$Q_{abs} = Q_{ex} - Q_{sca},$$

۱. DVICE

۲. FDTD Solution

برنامه در دسترس است و امکان انتخاب جسم مورد نظر نیز تعبیه شده است.

۷. نوار نتیجه: نتایج و داده‌های خام اولیه که برای هر جسم، میدان و یا مرز به‌دست آمده است به صورت داده‌های ماتریسی قابل نمایش است.

۸. مدیریت کدخط: امکان انتخاب، بارگذاری و یا ویرایش کدخط‌های محاسباتی ثانویه وجود دارد. همچنین در این ابزار داده‌های خام استخراج شده از متغیرهای تعریف شده در ابزار تحلیلگر مورد بررسی نهایی قرار می‌گیرد. دستوره‌های مربوط به نمایش داده‌های نهایی بر مبنای یکاهای دلخواه در این ابزار است.

۹. محیط ویرایش: داده‌های نهایی که در قسمت مدیریت کدخط دستور نمایش دادن آنها داده شد، در این محیط قابل نمایش و ویرایش نهایی است.

۱۰. نوار مقادیر: تمام مقادیر نهایی محاسبه شده و قابل نمایش به صورت ماتریس نمایش داده می‌شود. مقادیر نمایش داده شده در این نوار قابلیت انتقال به برنامه‌های دیگر از جمله متلب را دارند.

تعریف شده در نرم‌افزار، ۳) اینترکانکت^۱ جهت کد نویسی و طراحی اجسام، و در نهایت ۴) مُد سولوزن^۲ جهت بررسی مدهای انتشاری همچنین حل مسئله با استفاده از سایر تقریب‌هاست. محیط این زیربرنامه دارای ۱۰ قسمت اصلی زیر است:

۱. نوار وظیفه اصلی: در این نوار امکانات بارگذاری، ذخیره‌سازی، انتخاب و مدیریت پوشه‌های شبیه‌سازی فراهم شده است. همچنین امکان انتخاب و تغییر نوع یکاهای اندازه‌گیری جهت طراحی و شبیه‌سازی فراهم شده است.

۲. کتابخانه ساختاری مواد: امکان انتخاب و ایجاد توابع دی‌الکتریک برای ساختارهای مختلف از طریق مقداردهی دستی برای عناصر و ترکیب‌ها وجود دارد.

۳. ابزار تحلیلگر: امکان ایجاد پوشه‌های کدنویسی جهت تحلیل و یا ساماندهی مقادیر در حال محاسبه وجود دارد.

۴. مرجع میدان: می‌توان میدان‌های الکترومغناطیسی با قطبش‌ها و دامنه‌های متفاوت را تعریف کرد.

۵. نوار ویرایش: ویرایش و حذف ساختارهای طراحی شده در برنامه تعبیه شده است.

۶. نوار اشیاء: کلیه اجسام و ساختارهای تعریف شده در محیط

مراجع

- Engineering and Technology (2016).
9. N V Voshchinnikov and V G Farafonov, *Astrophysics and Space Science* **204**,1 (1993) 19.
10. M I Mishchenko, L D Travis and A A Lacis. Cambridge University Press (2002).
11. Y T Long and C Jing, "Localized Surface Plasmon Resonance Based Nanobiosensors", Springer (2014).
12. A Holleman and N Wiberg, "Lehrbuch der Anorganischen Chemie", 33rd Ed., de Gruyter (1985) 1486.
13. S K Agasti, S S Kim, X C Li and V M Rotello, *Chem. Rev.* **112** (2012) 2739.
14. C J Murphy, A M Gole, J W Stone, P N Sisco, A M Alkilany, E C Goldsmith and S C Baxter, *Acc. Chem. Res.* **41** (2008) 1721.
15. P Ghosh, G Han, M De, C K Kim, and V M Rotello *Adv. Drug Deliv. Rev.* **60** (2008) 1307.
16. N S Abadeer and C J Murphy, *J. Phys. Chem. C* **120** (2016) 469.
17. M Jahn, S Patze, I J Hidi, R Knipper, A I Radu, A
1. A M Stefan, "Plasmonics Fundamentals and Applications", Springer Science & Business Media (2007).
2. W A Katherine and R P Van Duyne, *Annu. Rev. Phys. Chem.* **58** (2007) 267.
3. J K Prashant et al., *The Journal of Physical Chemistry B* **110**, 14 (2006) 7238.
4. M M Miller and A A Lazarides. *The Journal of Physical Chemistry B* **109**, 46 (2005) 21556.
5. A Elrashidi, *The Journal of Computational and Theoretical Nanoscience* **13**,1 (2016) 280.
6. A Elrashidi, *Journal of Computational and Theoretical Nanoscience* **13**, 1 (2016) 280.
7. K Yee, *IEEE Transactions on antennas and propagation* **14**, 3 (1966) 302.
8. A Z Elsherbeni and D Veyssel, "The Finite-Difference Time-Domain Method for Electromagnetics with MATLAB Simulations." The Institution of

۱. INTERCONNECT

۲. MODE Solution

20. V Amendola, and M Meneghetti. *J. Mater. Chem.* **22** (2012) 24501.
21. R L Olmon *et al.*, *Physical Review B* **86**, 23 (2012) 235147.
22. E Martinsson *et al.*, *Plasmonics* **9**, 4 (2014) 773.
- Muhlig, S Yuksel, V Peksa, K Weber and T Mayerhofer, *Analyst* **141** (2016) 756.
18. S Schlücker, *Angew. Chem., Int. Ed.* **53** (2014) 4756.
19. R J Barsotti, M D Vahey, R Wartena, Y Chiang, J Voldman and F Stellacci, *Small* **3** (2007) 488.