

پلاسمون‌های سطحی جایگزیده در یک نانوقرص دایروی پوسته‌ای و حفره‌دار

پریوش هاشمی*، عمادالدین یاقوتی و فریدون بابائی

گروه فیزیک، دانشکده علوم پایه، دانشگاه قم، قم

پست الکترونیکی: h.hashemi@stu.qom.ac.ir

(دریافت مقاله: ۱۴۰۳/۰۹/۱۲؛ دریافت نسخه نهایی: ۱۴۰۳/۱۰/۱۶)

چکیده:

در این پژوهش، برانگیختگی پلاسمون‌های سطحی جایگزیده در یک نانوقرص دایروی پوسته‌ای و حفره‌دار به صورت نظری به روش تفاضل محدود در حوزه زمان شبیه‌سازی شد. تأثیر اندازه‌های پوسته و حفره بر حالت‌های پلاسمونی جایگزیده مورد تحلیل قرار گرفت. حالت‌های پلاسمونی جایگزیده از طیف‌های خاموشی استخراج، میدان‌های الکتریکی و چگالی توزیع بار آنها بر حسب پارامترهای ساختاری تحقیق شد. از نتایج به دست آمده مشخص شد با بررسی نانوذرات نامتقارن، که با تغییر مکان حفره اندازه پوسته در طرفین آنها متفاوت می‌شود، و همچنین از مطالعه نانوذرات دارای چند حفره، می‌توان به حالت‌های متنوع تر پلاسمونی در این نانوذرات دست یافت. وقوع حالت‌های متنوع در نانوذره پوسته‌ای و حفره‌دار می‌تواند کاربردهای گسترده‌ای در حوزه فوتونیک کوانتومی، حسگرهای پلاسمونی، پردازش اطلاعات و درمان نورگرمایی داشته باشد.

واژه‌های کلیدی: پلاسمون‌های سطحی جایگزیده، نانوذرات پوسته‌ای، پوسته نامتقارن، نانوذرات چندحفره‌ای

۱. مقدمه

مطالعه و تحقیق بر روی ویژگی‌های نوری نانو ساختارهای فلزی به مدد پیشرفت فناوری در شبیه‌سازی، ساخت و مشاهده مشخصات چنین ساختارهایی به شکوفایی رسیده است.

پلاسمون‌ها، به عنوان نوسان همسان و منسجم الکترون‌های نوار رسانش در فلزات، نقش اساسی در تعیین ویژگی‌های نوری فلزات ایفا می‌کنند. از این رو کنترل برهمکنش نور و ماده و دستیابی به یک فهم عمیق از پدیده‌های منتسب به آن در حوزه پلاسمونی، همواره مورد توجه پژوهشگران بوده است [۱-۴]. پلاسمون‌های سطحی انتشاری به صورت نوسانات پیوسته الکترون‌های سطحی در امتداد مرز بین فلز و دی‌الکتریک ظاهر می‌شوند و قادرند در امتداد سطح فلز با طول موج مشخصی منتشر شوند [۵]. اما پلاسمون‌های سطحی جایگزیده زمانی رخ

می‌دهند که نوسانات الکترون‌ها به صورت محلی در حجم محدودی مانند نانوذرات فلزی شکل می‌گیرند. در این حالت، میدان الکتریکی به طور موضعی تقویت شده و اثرات اپتیکی منحصر به فردی نظیر پراکندگی قوی و جذب بروز می‌کند [۶]. این نوع پلاسمون‌ها کاربردهای مهمی در تشدید نوری، حسگرهای زیستی، و بهبود عملکرد سلول‌های خورشیدی دارند [۷-۱۰]. بسامد تشدید حالت‌های پلاسمونی به شدت تحت تأثیر پارامترهای ساختاری و محیطی، همچون اندازه، شکل، ضریب شکست محیط و زیرلایه بوده و از این ویژگی می‌توان به عنوان ابزاری برای کنترل و تنظیم خواص پلاسمون‌های موضعی، استفاده کرد [۱۱].

زمانی که اندازه یک ماده به مقیاس نانو کاهش می‌یابد، در مقیاس طول مشخصه یا کمتر از آن، که خواص ماده را تعیین می‌کند، ماده ویژگی‌های کاملاً جدیدی پیدا می‌کند. در این مقیاس، خواص ماده

مطالعه و تحقیق شده است.

۲. سازوکار آمیختگی پلاسمونی

نانوذرات پوسته‌ای در برهمکنش نور با اتم‌های فلزی در بسامدهای مختلف، بستری مناسب برای تحریک حالت‌های پلاسمونی خواهند بود. در این حالات بارهای الکتریکی در لبه‌های داخلی و خارجی نانوذره پوسته‌ای تجمع یافته و تعامل میدان‌های مربوط به پلاسمون‌های داخلی و خارجی مطابق با سازوکار آمیختگی پلاسمونی (شکل ۱) می‌تواند توجیه‌کننده خواص اپتیکی و رفتار این نانوذرات باشد [۱۶ و ۱۷].

در واقع ساختار نانوذرات پوسته‌ای فلزی، به واسطه طراحی ویژه خود، می‌تواند به عنوان ترکیبی از یک ذره توپر (سطح خارجی پوسته فلزی) و یک کاواک (سطح داخلی پوسته فلزی) در نظر گرفته شود. این الگوی جفت‌شدگی بین سطح‌های داخلی و خارجی ذره، باعث ایجاد مدهای پلاسمونی جدیدی می‌شود که به کمک بررسی آنها، شناخت دقیق‌تری از تشدید پلاسمونی در این ساختارها حاصل می‌شود. مطابق با این مدل، برهم‌کنش بین ذره توپر و کاواک دو حالت پلاسمونی جدید ایجاد می‌کند: حالت متقارن با انرژی پایین‌تر و حالت پادمقارن با انرژی بالاتر. در حالت متقارن، بارهای همنام در لبه‌های داخلی و خارجی ذره در مقابل هم به گونه‌ای توزیع می‌شوند که گشتاور دوقطبی قابل توجهی ایجاد می‌کنند و در نتیجه، این حالت به شدت با نور برانگیخته می‌شود. از این‌رو، به این حالت، «حالت روشن» می‌گوییم. در حالت پادمقارن، بارهای مخالف در لبه‌های داخلی و خارجی مقابل هم قرار می‌گیرند. این آرایش مشخصه بارز این نوع قله خواهد بود و توزیع بار مخالف باعث کاهش گشتاور دوقطبی شده و از این‌رو، این حالت با عنوان «حالت تاریک» شناخته می‌شود؛ زیرا به دلیل برهم‌کنش نوری ضعیف‌تر، شدت جذب و پراکندگی کمتری را نشان می‌دهد [۱۸].

جفت‌شدگی میان حالت‌های روشن و تاریک به گونه‌ای است که با کاهش اندازه پوسته، جفت‌شدگی بین دو سطح داخلی و خارجی افزایش یافته و شکاف انرژی بین حالت‌های متقارن و پادمقارن بیشتر می‌شود. در چنین شرایطی، قله حالت روشن

به شدت به تغییرات اندازه، شکل و وضعیت توخالی یا توپر بودن آن حساس می‌شوند. با کاهش اندازه از مقیاس میکرو به نانو، تغییرات مهمی همچون افزایش نسبت سطح به حجم و ورود به قلمرو کوانتومی رخ خواهد داد. در مقایسه با ذرات توپر، نانو ساختارهای پوسته‌ای و حفره‌دار، به دلیل داشتن فضای خالی درون خود و غلبه رفتار اتم‌های سطحی بر اتم‌های درونی ماده، ویژگی‌های متمایزی همچون کاهش چگالی، افزایش واکنش پذیری، سطح فعال زیاد و ضریب انبساط حرارتی کم خواهند داشت. همچنین روش‌های متنوع سنتز این ساختارها، موجب گسترش روزافزون کاربردهای این مواد شده است [۱۲]. این ویژگی‌ها علاوه بر چالش‌های خود، مزایای زیادی نیز به همراه دارند؛ مساحت سطحی زیاد در نانوذرات نقش کلیدی در بهبود عملکرد کاتالیزورها، الکترودها، باتری‌های یون هلیوم و دیگر ساختارهای مشابه ایفا می‌کند. از جمله کاربردهای این نانوذرات در دارورسانی هدفمند و درمان سلول‌های سرطانی خواهد بود [۱۳ و ۱۴].

نانوذرات طلا در مقایسه با سایر فلزات، به دلیل پایداری بیشتر و سازگاری زیستی بالا، انتخاب محبوب‌تری در زمینه‌های بیولوژیکی و پزشکی هستند. اما نقره نیز به دلیل قابلیت تنظیم بهتر قله‌های پلاسمونی با تغییر اندازه و شکل نانوذرات، در ناحیه مرئی تا فروس قرمز برای کاربردهای خاص عملکرد بهتری از طلا دارد [۱۵]. همچنین، نانوذرات نقره به طور کلی نسبت به سایر فلزات پلاسمونی، راندمان خاموشی بسیار بالاتر و حساسیت عالی به ضریب شکست محیط ارائه می‌دهند.

در این مقاله، ویژگی پلاسمون‌های سطحی جایگزیده یک نانوقرص دایروی پوسته‌ای و حفره‌دار از جنس فلز نقره بررسی شده است. با تنظیم اندازه قطر حفره و قرص نقره، خواص پلاسمونیک آنها مطالعه شده است. همچنین با تغییر مکان حفره و عدم انطباق مرکز حفره و مرکز قرص نانوذراتی غیرمتقارن حاصل می‌شود به طوری که یک طرف پوسته نقره اندازه بیشتر و طرف دیگر آن اندازه کمتر خواهد داشت. در نهایت با افزایش تعداد حفره‌ها درون نانوذره نقره و تغییر تراکم آنها حالت‌های پلاسمونی مربوطه در نانوذرات چند حفره‌ای

به سمت طول موج‌های بلندتر جابه‌جا شده و «جابه‌جایی قرمز» نشان می‌دهد، در حالی که قله حالت تاریک به سمت طول موج‌های کوتاه‌تر یا «انتقال آبی» حرکت می‌کند. به طور مشابه، با افزایش اندازه پوسته و ثابت نگه داشتن قطر حفره، این روند برعکس می‌شود و فاصله بین حالت‌های متقارن و پادمتقارن کاهش می‌یابد [۱۹ و ۲۰].

این مفهوم به طور ویژه در طراحی نانوذرات برای کاربردهای اپتیکی بسیار مهم است، زیرا کنترل دقیق جفت‌شدگی و برانگیختگی مدهای پلاسمونی می‌تواند به تنظیم ویژگی‌های نوری نانوذرات پوسته‌ای کمک کند که در زمینه‌هایی مانند سنسورهای نوری و سامانه‌های تصویربرداری پیشرفته، کاربردهای گسترده‌ای دارند [۲۱]. باید توجه داشت که فوتون‌های فرودی با انرژی بیشتر یا طول موج‌های کوتاه‌تر، امکان برانگیختگی حالت‌های پلاسمونی با توزیع بار چهارقطبی، هشت قطبی و ... را نیز فراهم خواهند کرد و با توجه به پوسته‌ای بودن نانوذرات هر کدام می‌توانند به شکل متقارن و پادمتقارن ظاهر شوند. به این ترتیب ممکن است با توجه به هندسه و اندازه نانوذره، در طول موج‌های مختلف هر کدام از این نوسانات شدت یافته و بروز کنند [۲۲ و ۲۳]. چنانچه طول موج نور فرودی به نانوذره با طوج موج تشدید و تحریک پلاسمونی نانوذره برابر باشد شدت جذب و پراکندگی به شکل معناداری افزایش می‌یابد. بنابراین در این پژوهش با تحلیل قله‌های شکل گرفته در سطح مقطع خاموشی که مجموع نور پراکنده و جذب شده است، انرژی تشدید و اتلاف هر یک از حالات پلاسمونی، مطالعه شده است.

۳. روش محاسباتی

برای محاسبه میدان‌های الکتریکی و مغناطیسی و طیف خاموشی نانوذرات، معادلات ماکسول با روش شبیه‌سازی تفاضل محدود در حوزه زمان^۱ به کمک بسته نرم‌افزاری لومریکال نسخه 2024-R1 حل شدند. در این مقاله، ذرات قرص‌گونه با ضخامت ۵ نانومتر در صفحه $x-y$ تحت تابش نور

با طول موج ۲۰۰ تا ۱۰۰۰ نانومتر در راستای منفی محور z قرار گرفت و جهت قطبیدگی نور راستای محور x بوده است (شکل ۲). قطر نانوذرات در محدوده تقریب شبه‌استاتیک، بسیار کوچک‌تر از طول موج نور فرودی، و اندازه پوسته‌ها بیش از ۳ نانومتر است تا ملاحظات کوانتومی در مدل وارد نشود. برای شبیه‌سازی و مش‌بندی فضا و حل عددی در راستای x ، گام‌ها $0.3/0$ نانومتر و در راستای y ، $0.3/0$ نانومتر و در راستای z برابر $0.5/0$ نانومتر در نظر گرفته شده است.

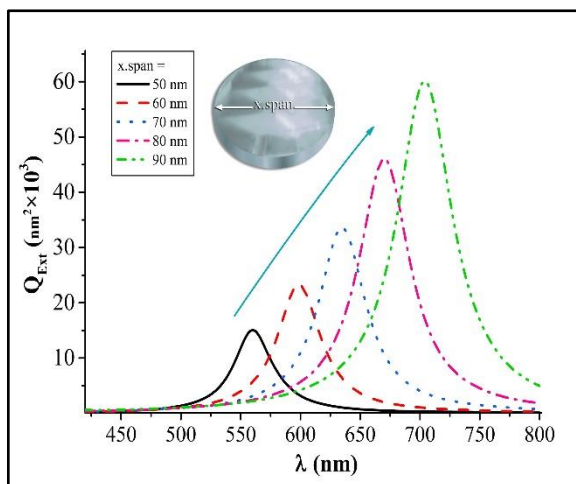
همچنین برای شبیه‌سازی دقیق و بهینه امواج در یک محیط باز، از شرط مرزی لایه‌های کاملاً تطبیق‌یافته^۲ استفاده شده است. این شرط مرزی با جذب کامل امواج برخوردی در مرزهای دامنه شبیه‌سازی، از بازتاب‌های ناخواسته جلوگیری می‌کند و محیطی مشابه یک دامنه نامحدود ایجاد می‌کند. استفاده از لایه‌های کاملاً تطبیق یافته باعث افزایش دقت نتایج و کاهش نیاز به گسترش بیش از حد دامنه محاسباتی شده است، که به طور مستقیم منجر به کاهش زمان و هزینه محاسبات می‌شود [۲۴].

۴. نتایج عددی و بحث

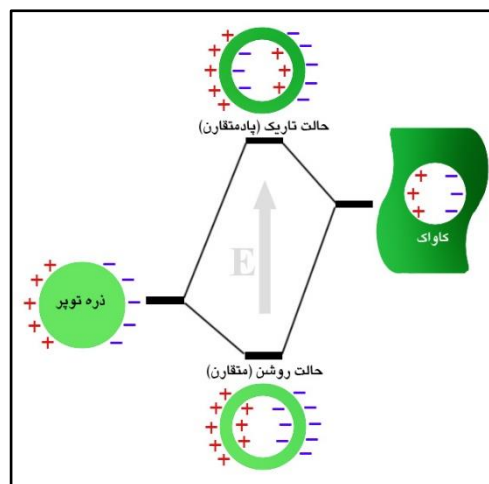
در شکل ۳ سطح مقطع خاموشی یک نانوذره پوسته‌ای نقره با اندازه قطر حفره ۲۵ نانومتر بر حسب طول موج نور فرودی برای اندازه‌های پوسته از ۵ تا ۴۰ نانومتر نشان داده شده است. همانطور که در شکل مشاهده می‌شود دو قله که یکی متقارن در طول موج‌های بالاتر و یکی پادمتقارن در طول موج پایین‌تر است در این طیف وجود دارند. شدت قله‌های متقارن که در سطح انرژی پایین‌تری واقع شده‌اند بسیار بیشتر از قله‌های پادمتقارن است. با افزایش اندازه پوسته از ۵ تا ۴۰ نانومتر قله پادمتقارن از ۳۶۹ تا ۴۶۲ نانومتر جابه‌جایی قرمز دارد، درحالی‌که قله متقارن از اندازه ۵ تا حدود ۱۵ نانومتر از ۸۵۶ نانومتر تا ۷۳۷ نانومتر جابه‌جایی آبی و سپس از اندازه ۱۵ تا ۴۰ نانومتر از ۷۳۷ نانومتر تا ۸۱۵ نانومتر جابه‌جایی قرمز خواهد داشت (شکل ۳).

۱. Finite-Difference Time-Domain (FDTD)

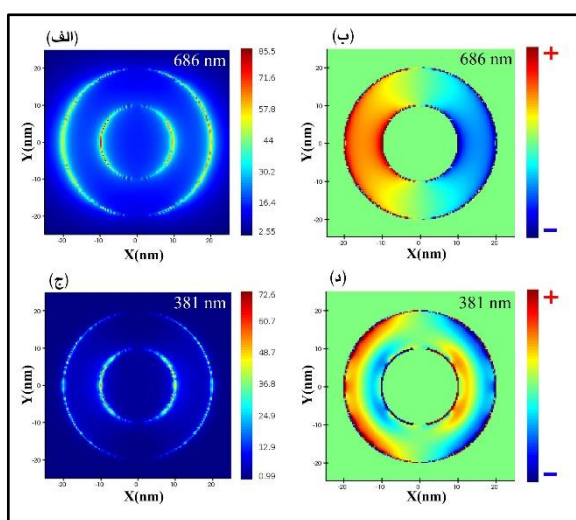
۲. Perfectly Matched Layer (PML)



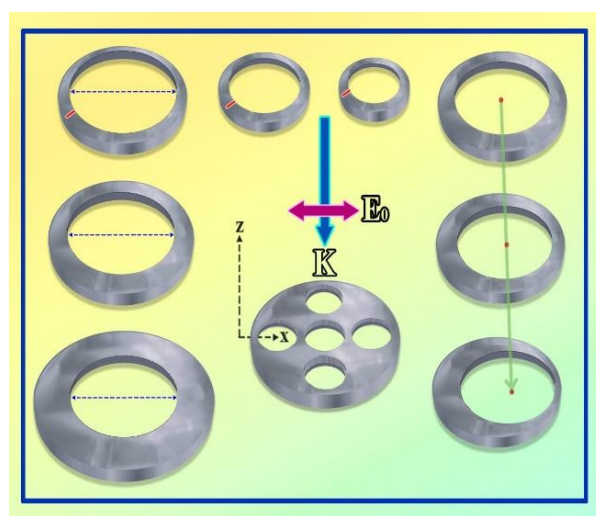
شکل ۴. سطح مقطع خاموشی نانوذره توپر نقره با قطرهای مختلف.



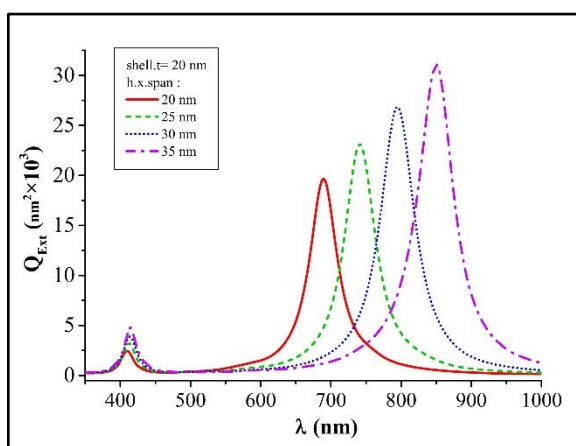
شکل ۱. مدل آمیختگی پلاسمونی در نانوذرات پوسته‌ای.



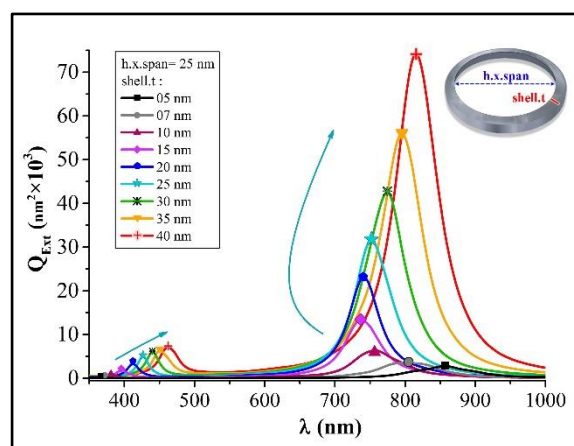
شکل ۵. میدان‌های الکتریکی و چگالی‌های توزیع بار برای مدهای تاریک و روشن یک نانوذره با اندازه قطر حفره ۲۰ نانومتر و پوسته ۱۰ نانومتری.



شکل ۲. طرحی از نانوقرص‌های دایروی پوسته‌ای و حفره‌دار.



شکل ۶. طیف خاموشی نانوذره پوسته‌ای نقره با پوسته ۲۰ نانومتر و اندازه حفره متغیر ۲۰ تا ۳۵ نانومتر.



شکل ۳. سطح مقطع خاموشی نانوذره پوسته‌ای نقره با اندازه هسته ثابت ۲۵ نانومتر و اندازه‌های متفاوت پوسته، بر حسب طول موج نور فرودی.

با افزایش اندازه پوسته برهمکنش لبه‌های داخلی و خارجی پوسته کاهش یافته و قله‌ها، که خود به نوعی حاصل آمیختگی مدهای اولیه نانوذره توپر و کاواک هستند، به هم نزدیک می‌شوند. با افزایش اندازه پوسته نانوذره و عبور از یک اندازه اشباع، با افزایش قطر نانوذره، جابه‌جایی قرمز ذره توپر متناظر (شکل ۴) بر روند جابه‌جایی آبی قله متقارن غلبه کرده و شاهد جابه‌جایی قله متقارن به سمت طول موج‌های بلندتر هستیم.

در شکل ۵، میدان‌های الکتریکی و چگالی‌های توزیع بار برای یک نانوذره با اندازه قطر حفره ۲۰ نانومتر و پوسته ۱۰ نانومتر ترسیم شده است. در شکل ۵، الف، از میدان الکتریکی در طول موج ۶۸۶ نانومتر برای قله متقارن معلوم است که ناحیه‌های با شدت میدان زیاد در راستای میدان الکتریکی اعمالی بیشتر بوده و این موضوع در شکل ۵، ب، با نمایش توزیع بار و شکل‌گیری یک دوقطبی متقارن مشخص است. در شکل ۵، ج نیز میدان الکتریکی برای طول موج ۳۸۱ نانومتر یعنی مد پادمقارن، نشان‌دهنده برانگیختگی آن در لبه‌های داخلی است. با توجه به شکل ۵، د، می‌توان ماهیت دوقطبی به صورت پادمقارن مشاهده کرد؛ زیرا با توجه به چگالی بارهای الکتریکی در راستای میدان نور اعمالی در لبه‌های داخلی و خارجی مقابل هم، بارهای مخالف یکدیگر توزیع شده است.

در شکل ۶، طیف خاموشی برای نانوذراتی با پوسته مشابه ۲۰ نانومتر و حفره‌هایی با اندازه ۲۰، ۲۵، ۳۰ و ۳۵ نانومتر ترسیم شده است. مشاهده شد که با افزایش اندازه حفره در نانوذره پوسته‌ای، یک جابه‌جایی قرمز و افزایش شدت قله‌ها برای قله متقارن داریم.

به عبارت دیگر جابه‌جایی قرمز قله‌های پلاسمونی در نانوذرات فلزی با افزایش اندازه نانوذره به دلیل تغییر در خواص الکترومغناطیسی نانوذره و برهمکنش آن با میدان الکتریکی اتفاق می‌افتد. با افزایش اندازه نانوذره، چگالی الکترون‌های رسانش افزایش می‌یابد و قله‌های پلاسمونی تقویت می‌شوند. میدان الکتریکی ناشی از نوسانات پلاسمونی در کل نانوذره توزیع گسترده‌تری پیدا می‌کند. این موضوع باعث کاهش بسامد تشدید پلاسمونی و در نتیجه جابه‌جایی قرمز می‌شود.

برای نانوذراتی با قطر حفره متغیر برای پوسته‌ای ثابت، در پوسته‌ای قبل از اندازه اشباع، روند قله پادمقارن به سمت طول موج‌های کوتاه‌تر است؛ در حالی که پوسته‌های با اندازه برابر با اندازه اشباع با افزایش اندازه حفره محل قله پادمقارن تقریباً ثابت باقی مانده و در اندازه‌های پوسته بعد از اندازه اشباع، جابه‌جایی قرمز در این قله دیده می‌شود (شکل ۷ را ببینید). به این ترتیب برای پوسته‌های زیر اندازه اشباع با افزایش قطر حفره در نانوذره قله‌های متقارن جابه‌جایی قرمز و قله‌های پادمقارن جابه‌جایی آبی خواهند داشت و برهمکنش قوی‌تری بین حالت‌های متناظر اولیه شکل می‌گیرد.

در شکل ۸، طول موج تمام مدهای مربوط به نانوذراتی با اندازه حفره ۲۵، ۳۰، ۳۵ و ۴۰ نانومتر بر حسب اندازه پوسته آنها ترسیم شد. همانطور که مشاهده می‌شود برای قله‌های متقارن در طول موج‌های بلندتر یک منحنی با کمینه در محدوده ۱۵ تا ۲۰ نانومتر قابل برآزش خواهد بود به طوری که با افزایش قطر حفره نانوذره، محل کمینه در اندازه‌های بزرگ‌تر رخ می‌دهد و قله‌های متقارن مشخصاً در طول موج‌های بالاتری شکل می‌گیرند. این تغییرات برای قله پادمقارن رفتار تقریباً خطی دارد و با افزایش اندازه قطر حفره، شیب این خط افزایش یافت. اختلاف مقادیر در پوسته‌های ضخیم ملموس‌تر است.

با تغییر مکان حفره و عدم انطباق مراکز یک قرص توپر و یک کاواک، که روی هم‌رفته نانوذره پوسته‌ای را شکل می‌دهد، می‌توانیم به مطالعه خواص پلاسمونی نانوذرات غیرمتقارن بپردازیم. در این نانوذرات اندازه پوسته در یک سمت بیشتر و در سمت دیگر کمتر خواهد بود. این امر تأثیر قابل توجهی بر خواص پلاسمونی این ذرات می‌گذارد. نامتقارن بودن اندازه پوسته باعث توزیع غیرمتقارن بارهای سطحی شده و این امر موجب می‌شود که حالت‌های جدیدی از پلاسمون‌های سطحی جایگزیده فعال شوند.

در شکل ۹، سطح مقطع خاموشی مربوط به یک نانوذره با اندازه قطر حفره ۳۰ نانومتر و با اندازه پوسته ۱۵ نانومتر مورد بررسی قرار گرفته است. رفته رفته با جابه‌جایی حفره اندازه پوسته در سمت چپ نانوذره از ۱۵ به ۲۵ نانومتر رسیده و در مقابل اندازه پوسته سمت راست از ۱۵ به ۵ نانومتر تغییر خواهد یافت.

همانگونه که در شکل ۹ دیده می شود یک قله پلاسمونی میانی در محدوده ۵۵۰ نانومتر علاوه بر قله های متقارن در حوالی ۸۰۰ نانومتر و پادمتقارن در حوالی ۴۰۰ نانومتر، ظاهر می شود. در حقیقت تغییر اندازه در دو طرف ساختار باعث شکست تقارن می شود و بارهای القا شده در سطح نانوذره نامتوازن می شود؛ بنابراین میدان الکترومغناطیسی در هر سمت شدت متفاوتی خواهد داشت. در این صورت بسامد تشدید پلاسمونی در هر سمت تغییر کرده و باعث می شود که مدهای نوسانی دوقطبی یا چندقطبی به صورت متقارن یا پادمتقارن بروز پیدا کنند. این حالت های جدید می توانند رفتاری متفاوت از آنچه در یک ساختار متقارن انتظار داشتیم، نشان دهند.

مطابق شکل ۹، با افزایش اندازه پوسته در سمت چپ (و کاهش اندازه پوسته در سمت راست) هر سه قله به طور کلی جابه جایی قرمز داشتند؛ اگر چه برای بعضی از حالت ها با توجه به عدم تقارن و پیچیدگی ساختار، رفتار معکوس دیده شد. به طور مثال در قله متقارن برای اندازه های پوسته ای ۱۱ نانومتر (راست) و ۱۹ نانومتر (چپ) و همچنین ۲۲ نانومتر (راست) و ۸ نانومتر (چپ) جابه جایی آبی نسبت به قله قبلی دیده شد. در قله هیبریدی جدید برای اندازه های پوسته ای ۱۰ نانومتر (راست) و ۲۰ نانومتر (چپ) یک جابه جایی قرمز ناگهانی دیده می شود. رفتار قله های پادمتقارن نیز در این تغییر اندازه قابل تأمل است؛ چرا که ضمن جابه جایی قرمز قله ها با جابه جایی حفره به سمت راست، شدت قله ها تا اندازه پوسته ای ۱۰ نانومتر (راست) و ۲۰ نانومتر (چپ) ابتدا کاهش یافته و بعد از آن شاهد افزایش مجدد شدت قله ها هستیم. برای نانوذره پوسته ای نامتقارن با اندازه قطر حفره ۳۰ نانومتر و اندازه پوسته ای ۷ نانومتر (راست) و ۲۳ نانومتر (چپ) قله های پلاسمونی در طول موج های ۸۱۲، ۵۵۰ و ۴۱۴ نانومتر رخ داده است.

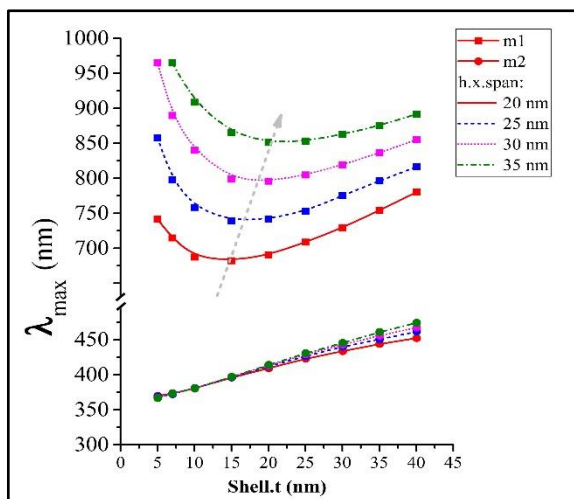
در شکل ۱۰، میدان های الکتریکی و چگالی های توزیع بار الکتریکی این حالت ها نشان داده شده اند. از شکل ۱۰ الف، کاملاً مشخص است که در لبه های داخلی و بیرونی نانوذره، برانگیختگی میدان الکتریکی بسیار بیشتر از سایر نواحی است. باید توجه داشت مطابق شکل ۱۰ ب شدت میدان الکتریکی در طول موج ۸۱۲ نانومتر در سمت راست پوسته

(به ویژه در لبه بیرونی) بیشتر از سمت چپ است. این در حالی است که میدان الکتریکی در پوسته متقارن، در تمام حالت ها در دو طرف کاملاً همسان شکل می گیرد. با توجه به شکل ۱۰ ج، به خوبی مشاهده شد که بارهای مثبت در لبه داخلی و بیرونی سمت راست و بارهای منفی در لبه های داخلی و بیرونی سمت چپ توزیع شده اند. این تصویر با آنچه انتظار ما از یک حالت متقارن است کاملاً همخوانی دارد. برای این حالت روشن می توانیم گشتاور دوقطبی قابل توجهی را متصور باشیم.

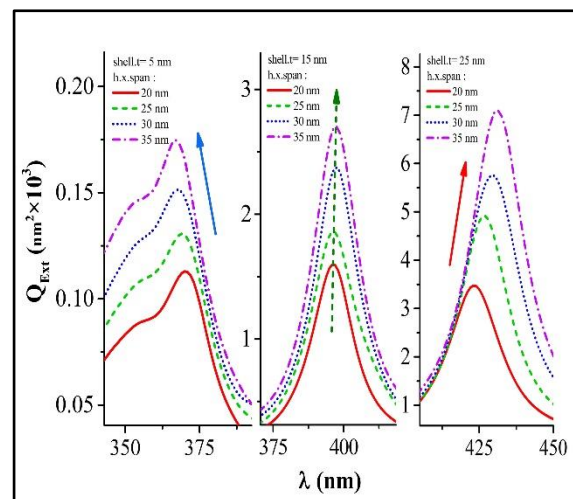
در شکل ۱۰ د، میدان الکتریکی در طول موج ۵۵۰ نانومتر یا همان قله پلاسمونی جدید میانی، نشان داده شده است. در این حالت برانگیختگی، میدان علاوه بر راستای x که راستای قطبش نور بوده، در لبه های بالایی و پایینی (در راستای y)، نیز شدت قابل توجهی داشت. این امر نشان دهنده شکل گیری یک چهارقطبی متقارن است و با توجه به نوع توزیع بار در شکل ۱۰ و، به خوبی مشاهده می شود.

در شکل ۱۰ ز، میدان الکتریکی مربوط به حالت پلاسمونی در طول موج ۴۱۴ نانومتر نمایان است که علی رغم بزرگ تر بودن اندازه پوسته در سمت چپ، برای این حالت میدان الکتریکی در پوسته ضخیم تر، شدت یافته است (شکل ۱۰ ح). در شکل ۱۰ ط، مشاهده شد که نحوه توزیع بارهای الکتریکی در لبه های داخلی نسبت به بیرونی به صورت وارونه رخ داده و با یک قله کاملاً پادمتقارن مواجه هستیم که سهم گشتاور چهارقطبی، به علت عدم تقارن ساختار، در این قله نسبت به قبل افزایش یافته است.

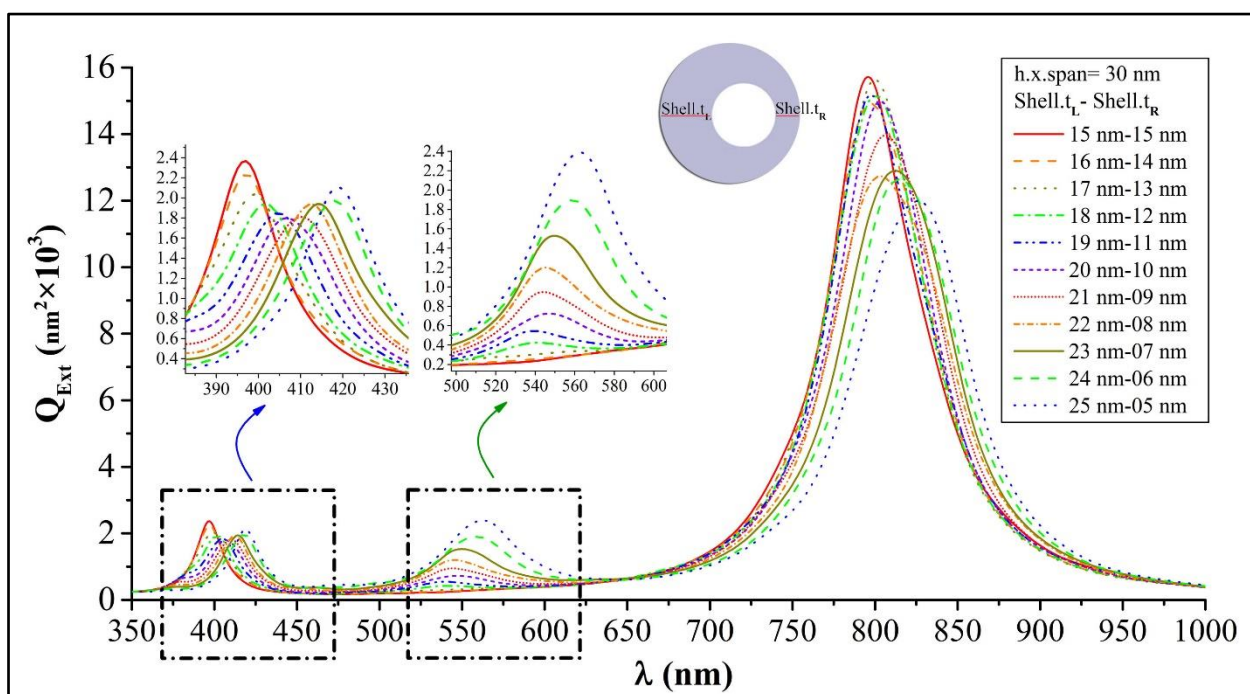
در نانوذرات قرصی که بیش از یک حفره درون آنها شکل می گیرد می توان شاهد برانگیختگی حالت های جدید پلاسمونی نسبت به حالت های تک حفره ای بود. برای بررسی این موضوع درون یک قرص با قطر ۶۰ نانومتر، حفره هایی با قطر ۱۲ نانومتر در نظر گرفتیم و با افزایش تعداد حفره ها حالت های برانگیخته شده پلاسمونی را مطالعه کردیم. در شکل ۱۱، طیف خاموشی نانوذره ای با یک حفره، دقیقاً در مرکز آن، مشاهده می شود که یک قله متقارن و یک قله پاد متقارن در طول موج های ۴۳۲ و ۴۱۱ نانومتری آن به خوبی شکل گرفته است.



شکل ۸. طول موج حالت‌های متقارن و پادمتقارن برای حفره‌های ۲۰ تا ۳۵ نانومتر بر حسب اندازه پوسته.



شکل ۷. مقایسه روند قله‌های پادمتقارن در نانوذرات با پوسته‌های ۵، ۱۵ و ۲۵ نانومتر و اندازه حفره ۲۰ تا ۳۵ نانومتر.

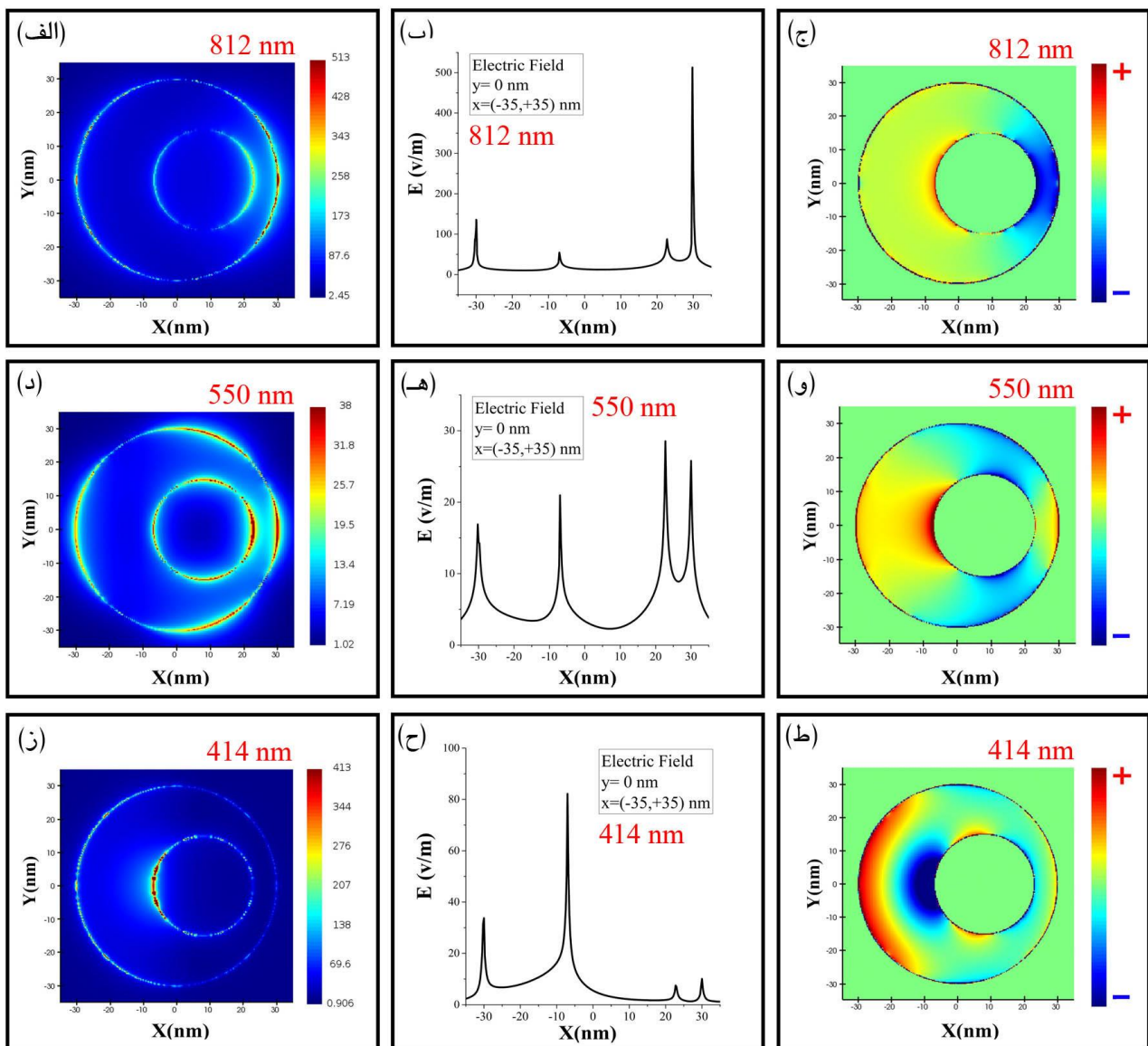


شکل ۹. سطح مقطع خاموشی برای نانوذره پوسته‌ای نامتقارن با اندازه قطر حفره ۳۰ نانومتر.

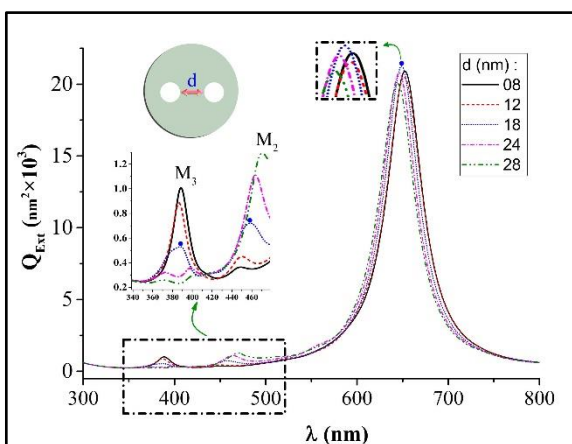
نانومتر بیشترین مقدار خود را دارد و با افزایش فاصله دو حفره از یکدیگر از طول موج ۶۵۲ تا ۶۴۴ نانومتر جابه‌جایی آبی خواهد داشت.

با افزایش فاصله دو حفره به تدریج شدت مد M_1 کاهش یافته و برعکس مد M_2 شدت می‌یابد و روند جابه‌جایی قرمز در آن به خوبی قابل ملاحظه است.

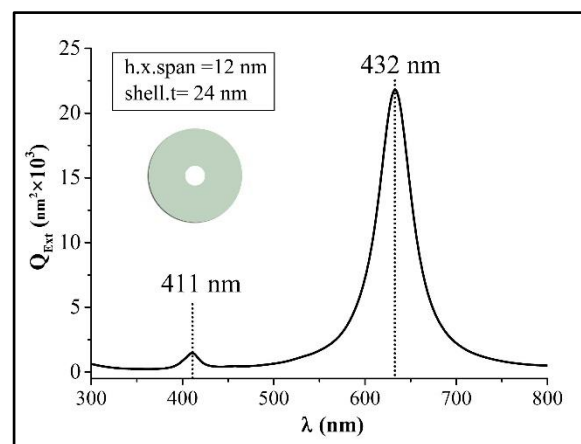
در شکل ۱۲، طیف‌های خاموشی برای یک نانوذره با قطر ۶۰ نانومتر و دارای ۲ حفره به طور متقارن در دو طرف قرص با قطر ۱۲ نانومتر و فواصل مختلف دو حفره از یکدیگر (d) ترسیم شده است. مشاهده می‌شود که علاوه بر قله اصلی در حوالی طول موج ۶۵۰ نانومتر (M_1)، قله‌های دیگری در طول موج‌های پایین‌تر پدیدار می‌شوند. قله دوقطبی برای فاصله ۱۸



شکل ۱۰. میدان‌های الکتریکی و چگالی‌های توزیع بار برای یک نانوذره با اندازه‌های حفره ۳۰ نانومتر و پوسته ۷-۲۳ نانومتر (راست-چپ) در طول موج‌های ۸۱۲، ۵۵۰ و ۴۱۴ نانومتر.



شکل ۱۲. طیف‌های خاموشی نانوذره قرصی دو حفره‌ای با فاصله حفره‌های متفاوت.

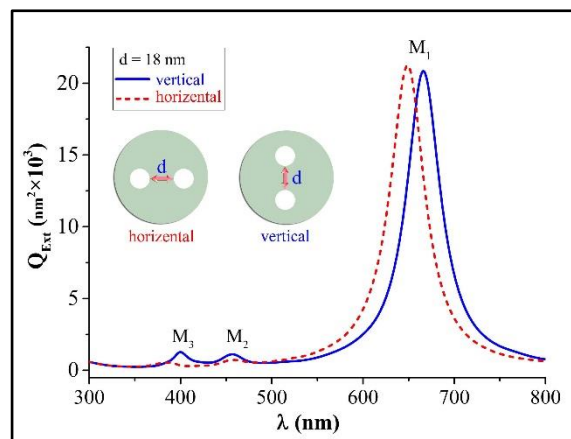


شکل ۱۱. طیف خاموشی نانوذره با یک حفره متقارن.

راستای میدان الکتریکی نور فرودی است، نبوده و بارها به سمت بالاتر و پایین‌تر از راستای افقی تمایل پیدا کرده‌اند. این ویژگی را به چندقطبی شدن توزیع بار می‌توان نسبت داد. تفاوت مهم دیگر این حالت با حالت قبلی این است که لبه سمت چپ حفره سمت راست و لبه سمت راست در حفره سمت چپ، تجمع بار قابل توجهی را بر خلاف قبل پیدا کرده است. مجموعاً می‌توانیم این حالت را یک چهارقطبی متقارن در نظر بگیریم.

در طول موج ۳۸۸ نانومتر برای حفره‌های با آرایش افقی شاهد حالتی هستیم که در آن بیشترین تجمع بار برای لبه سمت چپ در حفره سمت راستی و لبه سمت راست در حفره سمت چپی است. در این حالت در تمام لبه داخلی حفره‌ها بار به صورت همنام توزیع شده است و به صورت مخالف بار الکتریکی روی لبه خارجی قرص واقع شده است. به این ترتیب با یک حالت دوقطبی پادمتقارن مواجه هستیم.

در آرایش عمودی فاصله افقی حفره‌ها از مرکز و لبه بیرونی نانوذره برابر است و در طول موج ۶۶۶ نانومتر برای قله اصلی پلاسمونی شاهد شکل‌گیری یک دوقطبی کاملاً متقارن هستیم و توزیع بارهای الکتریکی بسیار متوازن روی لبه‌های داخلی و بیرونی است. برای حالت دوم مربوط به طول موج ۴۵۸ نانومتر با توجه به این که توزیع بارها در راستای افقی تجمع بزرگ‌تری دارند، بار لبه‌های داخلی حفره‌ها در سمت نزدیک لبه قرص، مشابه بار قرار گرفته روی لبه بیرونی است. به این حالت می‌توان یک گشتاور دوقطبی قوی نسبت داد. اگر چه با توجه به شکل‌گیری چهارقطبی پادمتقارن در حاشیه‌های مورب لبه خارجی با لبه داخلی حفره‌ها می‌توان این حالت را ترکیبی از یک حالت دوقطبی متقارن و چهارقطبی پادمتقارن در نظر گرفت. در طول موج ۴۰۰ نانومتر توزیع بارهای الکتریکی به گونه‌ای است که از سمت راست لبه خارجی به صورت هشت ناحیه تقریباً مجزا با بارهای منفی و مثبت واقع شده‌اند. لبه‌های داخلی حفره‌ها نیز به چهار قسمت مثبت و منفی تقسیم شده‌اند. به این ترتیب این حالت را می‌توانیم به عنوان یک هشت قطبی پادمتقارن در نظر گرفت.



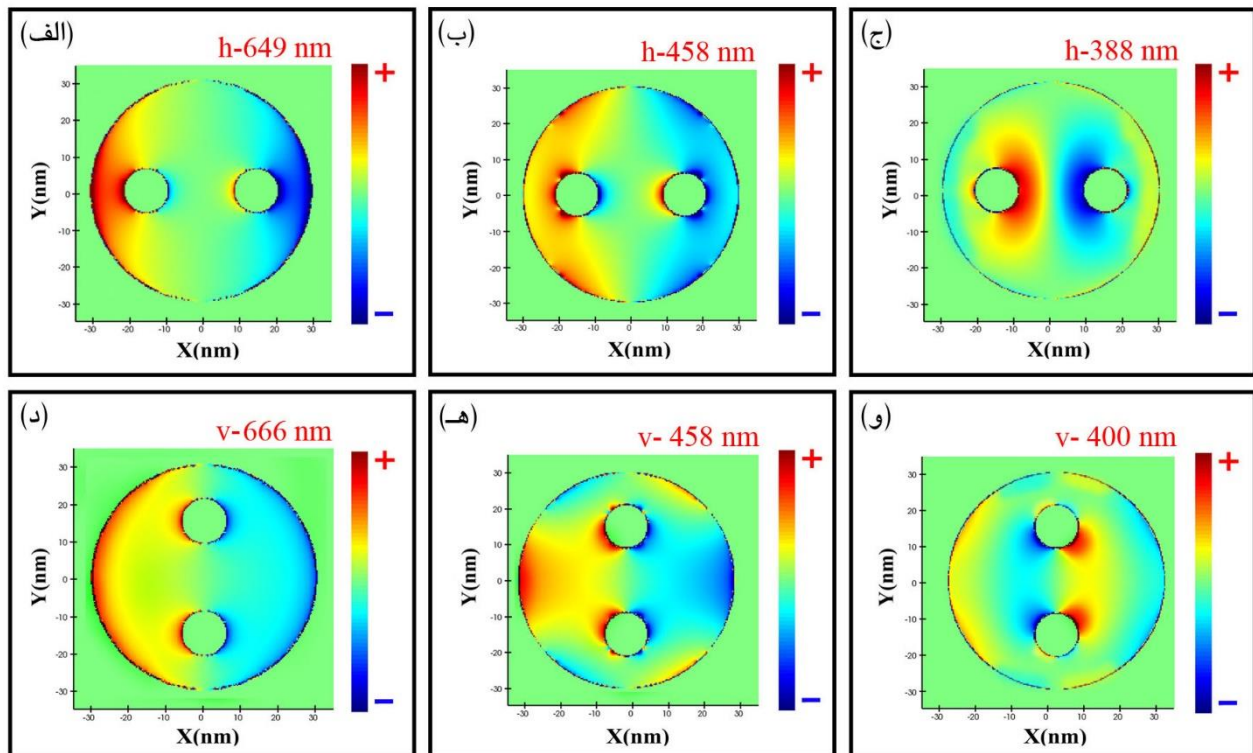
شکل ۱۳. طیف‌های خاموشی نانوذره دو حفره‌ای با فاصله حفره مشابه ۱۸ نانومتر و با آرایش حفره‌های موازی و عمودی بر میدان الکتریکی فرودی.

در شکل ۱۳، یک مقایسه بین طیف‌های خاموشی برای حفره‌های موازی و عمود بر میدان الکتریکی نشان داده شده است. از شکل آشکار است که در حالت عمودی نیز یک قله اصلی با شدت زیاد در طول موج بالاتر از حالت افقی روی می‌دهد. متناظر با قله‌های دوم و سوم در حالت افقی، برای حالت عمودی نیز قله‌هایی با پهنای کمتر و شدت بیشتر قابل مشاهده است.

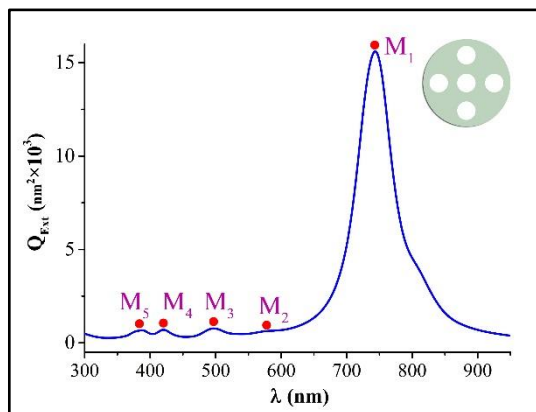
در شکل ۱۴، چگالی‌های توزیع بار در یک نانوقرص دایروی دو حفره‌ای با آرایش افقی و عمودی نشان داده شده است. در آرایش افقی برای طول موج ۶۴۹ نانومتر، بارهای الکتریکی به خوبی در راستای میدان الکتریکی روی لبه‌های داخل حفره‌ها و لبه بیرونی قرص تجمع پیدا کرده است.

لبه داخلی حفره سمت راست و لبه بیرونی قرص، بارهای همنام منفی و در مقابل لبه داخلی حفره و لبه بیرونی قرص در سمت چپ، بارهای همنام مثبت دارند. به این ترتیب یک گشتاور دوقطبی قوی درون این نانوذره شکل گرفته است. با این وجود برای حفره سمت راست، در لبه داخلی سمت چپ حفره، بار مثبت و در سوی دیگر، برای حفره سمت چپ، در لبه داخلی راستی، بار منفی توزیع شده است. گشتاور دوقطبی بین این دو لبه که بر خلاف گشتاور دوقطبی اصلی است ضعیف‌تر بوده و همچنان یک حالت دوقطبی متقارن را شاهد هستیم.

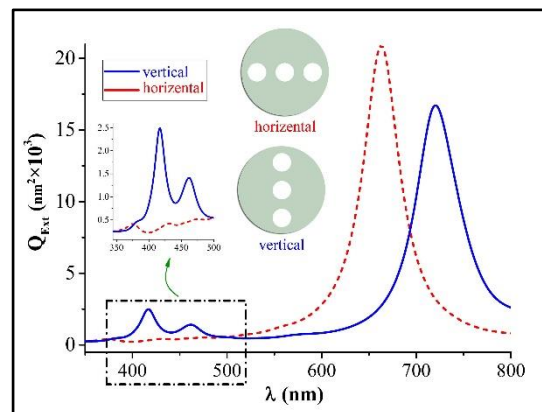
در طول موج ۴۵۸ برای همین نانوذره شرایطی مشابه با حالت قبل به لحاظ توزیع بارها رخ داده، با این تفاوت مهم که دیگر تمرکز بارهای الکتریکی روی لبه‌های سمت راست یا چپ که



شکل ۱۴. چگالی‌های توزیع بار یک نانوذره قرصی دو حفره‌ای با آرایش‌های افقی و عمودی و فاصله بین حفره‌های ۱۸ نانومتر.



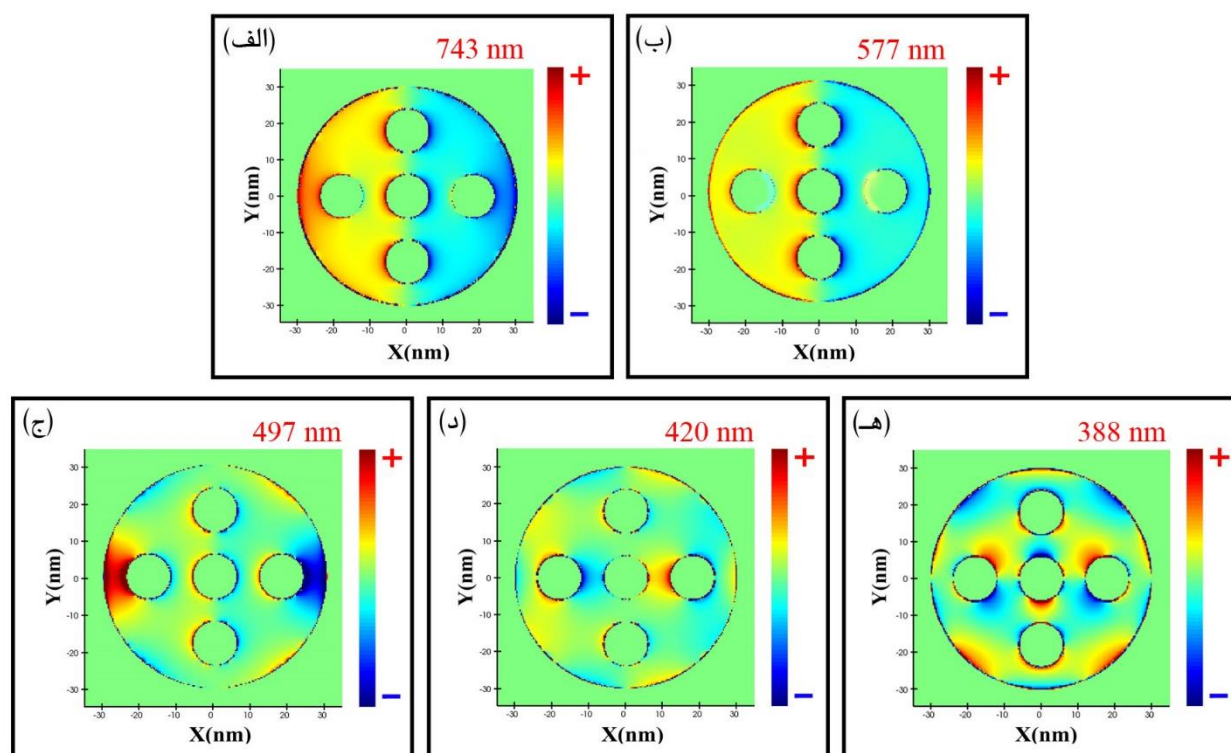
شکل ۱۶. سطح مقطع خاموشی برای یک نانوذره قرصی ۵ حفره‌ای.



شکل ۱۵. سطح مقطع خاموشی برای یک نانوذره قرصی سه حفره‌ای.

با قطر ۶۰ نانومتر دارای سه حفره خطی با قطرهای ۱۲ نانومتر و با فواصل یکسان نشان داده شده است. حالت‌های پلاسمونی شکل گرفته در نانوذرات سه حفره‌ای عمودی نسبت به آرایش افقی یک جابه‌جایی قرمز داشت. همچنین شدت قله‌های فرعی در طول موج‌های پایین‌تر در آرایش عمودی بیشتر و قله‌های با پهنای کمتر تشکیل می‌شوند. این محاسبات برای نانوذره قرصی با ۵ حفره، دنبال شده و در

شباهت این حالت با حالت متناظر در آرایش افقی این است که در طول موج ۳۸۸ نانومتر در آرایش افقی بیشترین تجمع بار در ناحیه بین دو حفره روی داده است. با افزایش تعداد حفره‌ها درون قرص نقره، حالت‌های پیچیده‌تری از لحاظ برانگیختگی‌های پلاسمونی و توزیع بار الکتریکی شکل خواهد گرفت. در شکل ۱۵ طیف‌های خاموشی برای هر دو آرایش‌های افقی و عمودی و نانوذره‌ای



شکل ۱۷. چگالی توزیع بار نانوذره قرصی پنج حفره‌ای در طول موج‌های مختلف پلاسمونی.

منفی و لبه سمت چپ همگی آنها بار مثبت دارند، ولی در لبه خارجی قرص، شاهد شکل‌گیری یک چهارقطبی ضعیف هستیم.

ویژگی بارز این حالت، تجمع شدید بارهای الکتریکی در راستای افقی در لبه خارجی قرص و لبه نزدیک‌تر حفره‌های کناری در دو طرف است. این حالت را همچون قبل می‌توانیم ترکیبی از یک دوقطبی متقارن و یک چهارقطبی پادمتقارن در نظر گرفت.

در طول موج ۴۲۰ نانومتر (M_4) نیز شاهد آمیختگی یک دوقطبی پادمتقارن و یک هشت‌قطبی پادمتقارن هستیم. در این حالت توزیع بار درون حفره‌ها همچنان به شکلی است که بارهای منفی در سمت راست و بارهای مثبت در سمت چپ واقع شده‌اند، اما بر خلاف قبل لبه خارجی به نواحی بیشتری تقسیم شده است. در پر انرژی‌ترین حالت یعنی طول موج ۳۸۸ نانومتر (M_5) به یک حالت بسیار پیچیده دست یافتیم که لبه حفره‌های داخلی وابسته به موقعیت آنها به دو یا چند بخش مختلف تقسیم شده و لبه خارجی نیز شامل نواحی متعدد شده است که می‌توان این حالت را به یک وضعیت پادمتقارن وابسته کرد.

شکل ۱۶ نتایج آن آمده است، که به وضوح افزایش مدهای مختلف پلاسمونی دیده می‌شود.

در شکل ۱۷. الف، در طول موج ۷۴۳ نانومتر، که قله اصلی (M_1) در طیف خاموشی نانوذره ۵ حفره‌ای است، شاهد یک حالت دوقطبی متقارن هستیم.

تفاوت عمده حالت بعدی که در طول موج ۵۷۷ نانومتر رخ می‌دهد (M_2) نسبت به قله اول تجمع بیشتر بارهای الکتریکی در لبه داخلی حفره‌های عمودی است در حالی که در قله اول، تجمع بار بیشتری در لبه بیرونی قرص دیده می‌شود. همانطور که پیش از این اشاره شد در حالت متقارن نیز بار لبه‌های مقابل هم در حفره‌های افقی بر خلاف هم خواهند بود. اما به طور مثال در حفره سمت راست که در ناحیه منفی واقع شده است لبه داخلی سمت چپ حفره تجمع ضعیفی از بارهای مثبت را نشان می‌دهد.

این موضوع به طور وارونه در حفره سمت چپ نیز دیده می‌شود. هر چه به حالت‌های پلاسمونی در طول موج‌های پایین‌تر نزدیک می‌شویم به تدریج مرتبه چندقطبی‌های بالاتر متناظر با این حالات افزایش می‌یابد. در طول موج ۴۹۷ حالت (M_3) رخ می‌دهد که در آن لبه سمت راست همه حفره‌ها بار

۵. نتیجه گیری

در این پژوهش، خواص پلاسمونی یک نانوذره قرصی دایروی و حفره دار به روش تفاضل محدود در حوزه زمان شبیه سازی شد. از نتایج به دست آمده مشخص شد نانوذره پوسته ای به مثابه حالتی ترکیبی از یک نانوذره توپر و یک کاواک است. آمیخته شدن حالت های پلاسمونی نانوذره توپر و کاواک، عامل ایجاد دو حالت متقارن و پادمقارن است. همچنین در طول موج های پایین تر (انرژی بیشتر) امکان برانگیختگی حالت های چهارقطبی، هشت قطبی یا مراتب بالاتر به صورت متقارن و پادمقارن نیز وجود دارد که توانستیم با تنظیم قطر حفره و اندازه پوسته در نانوذرات به حالت های بهینه پلاسمونی دست یابیم. در نانوذرات غیر متقارن ساختاری، که مکان حفره نسبت به مرکز جابه جا شده و موجب تفاوت اندازه پوسته در دو طرف نانوذره

می شود، قله های پلاسمونی جدیدی ناشی از برانگیختگی های چهارقطبی ظاهر شدند. نهایتاً با افزایش تعداد حفره ها و واقع شدن آنها در آرایش های مختلف در یک نانوذره فلزی، نظر به پیچیدگی های ساختاری حاصل شده از برهمکنش لبه های حفره های مختلف با یکدیگر و لبه خارجی نانوذره، حالت های پلاسمونی جدید و قابل کنترلی به وجود آمد. با توجه به امکان دستیابی به حالت های متنوع پلاسمونی در نانو ساختارهای پیشنهادی در این پژوهش و کنترل دقیق رفتار اپتیکی این حالات در برهمکنش نور و ماده، نانوذرات قرصی پوسته ای و چند حفره ای به صورت بالقوه می توانند بستری فوق العاده برای کاربردهای متنوع در فوتونیک کوانتومی، دارورسانی و پزشکی، حسگرهای زیستی و بهبود عملکرد سلول های خورشیدی و... باشند.

مراجع

1. M A García, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **44**, 28 (2011) 283001.
2. P A Sohi and M Kahrizi, "Recent Advances in Nanophotonics-Fundamentals and Applications" IntechOpen, London, UK, (2020).
3. F Babaei, M Javidnasab, and A Rezaei, *Plasmonics* **13** (2018) 1491.
4. S A Maier, "Plasmonics: Fundamentals and Applications" New York: springer (2007).
5. F Babaei and M Rostami, *Opt. Commun.* **439** (2019) 8.
6. K Kosuda, J Bingham, et al., "Handbook of Nanoscale Optics and Electronics" Northwestern University, Evanston, IL, USA (2010).
7. C Li and Y Jin, *Adv. Funct. Mater.* **31**, 7 (2021) 2008031.
8. D Sun, et al., *ACS Nano* **9**, 6 (2015) 5657.
9. A R Ferhan, et al., *Nanoscale Adv.* **2**, 8 (2020) 3103.
10. S Li, et al., *ACS Nano* **15**, 7 (2021) 10759.
11. R Yu, et al., *Chem. Soc. Rev.* **46**, 22 (2017) 6710.
12. M Zeng, et al., *Nanoscale* **16**, 10 (2024) 5232.
13. C de la Encarnación, et al., *Adv. Drug Deliv. Rev.* **189** (2022) 114484.
14. C Li and Y Jin, *Adv. Funct. Mater.* **31**, 7 (2021) 2008031.
15. E D Palik (Ed.), "Handbook of Optical Constants of Solids III", Academic Press (1998).
16. T Perera, et al., *J. Phys. Chem. C* **124**, 50 (2020) 27694.
17. Y W Ma, et al., *Plasmonics* **12** (2017) 1057.
18. E Prodan, et al., *Science* **302**, 5644 (2003) 419.
19. A Genç, et al., *Nanophotonics* **6**, 1 (2017) 193.
20. S Lal, S Link and N J Halas, *Nat. Photonics* **1**, 11 (2007) 641.
21. W Feng, et al., *Anal. Chem.* **91**, 4 (2019) 3002.
22. E A Gurvitz, et al., *Laser Photonics Rev.* **13**, 5 (2019) 1800266.
23. C Radloff and N J Halas, *Nano Lett.* **4**, 7 (2004) 1323.
24. G Festa and S Nielsen, *Bull. Seismol. Soc. Am.* **93**, 2 (2003) 891.