

جفت‌شدگی ترتیبی اکسی‌پلاستونی در نانوذرات دو لایه‌ای نقره-سیانین بر بستر تک‌لایه‌ای مولیبدن دی‌سولفاید

ایمان بدری*، عمادالدین یاقوتی و فریدون بابائی

گروه فیزیک، دانشکده علوم پایه، دانشگاه قم، قم

پست الکترونیکی: i.badri@stu.qom.ac.ir

(دریافت مقاله: ۱۴۰۴/۰۳/۳۱؛ دریافت نسخه نهایی: ۱۴۰۴/۰۴/۳۰)

چکیده:

در این مقاله، جفت‌شدگی اکسایتون-پلاسمون-اکسایتون در یک سامانه دو لایه‌ای، شامل قرص نقره و قرص رنگدانه سیانین با انباشت لایه بر روی بستر تک‌لایه‌ای مولیبدن دی‌سولفاید با استفاده از روش تفاضل محدود در حوزه زمان، شبیه‌سازی و طیف‌های خاموشی اپتیکی از این سامانه در پارامترهای مختلف ساختاری بررسی شد. نتایج مطالعات نشان دادند که حالت‌های پلاریتونی جفت شده حاصل از برهم‌کنش متوالی میان حالت پلاسمونی نقره، اکسایتون‌های قرص سیانین و اکسایتون‌های A و B زیرلایه MoS_2 ، منجر به چند شاخه شدن انرژی و شکافت‌های قابل ملاحظه رابی می‌شوند. از نتایج این پژوهش مشخص شد که ابتدا حالت پلاسمونی نقره با اکسایتون‌های سیانین جفت شده و سپس شاخه پایینی انرژی آن‌ها با اکسایتون‌های A و B زیرلایه MoS_2 برهم‌کنش می‌کنند. همچنین تغییرات هندسه قرص‌ها، امکان کنترل دقیق انرژی پلاریتونی و ضریب جفت‌شدگی را فراهم می‌آورد. این سامانه به عنوان بستری مناسب برای طراحی مؤلفه‌های فعال اپتیکی با قابلیت تنظیم، کاربردهایی بالقوه در حسگرهای زیستی، نانولیزرها و بسیاری از فناوری‌های کوانتومی خواهد داشت.

واژه‌های کلیدی: پلاسمون‌های سطحی، اکسایتون، جفت‌شدگی ترتیبی، شکافتگی رابی

می‌کند [۹-۱۱].

۱. مقدمه

در کانون این پدیده، پلاسمون‌ها قرار دارند؛ نوسانات جمعی الکترون‌های آزاد در سطح فلزات که با نور برهم‌کنش می‌کنند و قادرند انرژی الکترومغناطیسی را در مقیاس‌هایی کوچکتر از حد پراش متمرکز نمایند. با وجود مزایای فوق‌العاده پلاسمون‌ها در ایجاد میدان‌های نوری شدید و موضعی، اتلاف اهمی ذاتی در فلزات باعث محدودیت در طول عمر و پایداری آن‌ها می‌شود [۱۲ و ۱۳]. در این بین فلز نقره با داشتن عامل کیفیت نسبتاً بالا و قابلیت کافی در تنظیم حالت‌های برانگیختگی پلاسمونی با تغییر پارامترهای ساختاری همچون اندازه نانوذره و حساسیت قابل توجه به ضریب شکست محیط، به عنوان انتخابی مناسب برای مطالعات پدیده‌های منتسب به پلاسمون‌ها خواهد بود [۱۴ و ۱۵].

برهم‌کنش بین نور و ماده در قالب یک ساختار آمیخته در مقیاس نانومتری، یکی از جنبه‌های پیشرفته و پرکاربرد در حوزه مطالعات اپتیکی محسوب می‌شود [۱-۵]. ساختاری چند مؤلفه‌ای که از برهم‌کنش بین یک حالت پلاسمونی با دو حالت مستقل اکسایتونی پدید می‌آید، به صورت یک شبه‌ذره فوق آمیخته تعریف می‌شود که با نام اکسی‌پلاستون (اکسایتون-پلاسمون-اکسایتون) شناخته می‌شود [۶-۸]. این ساختار سه‌گانه نه تنها مرزهای شناختی ما را از سامانه‌های برهم‌کنش نوری گسترش می‌دهد، بلکه بستر مناسبی برای توسعه نسل جدیدی از مواد و تجهیزات فوتونیکي فراهم

در سوی دیگر، اکسایتون‌ها، که حاصل حالتی مقید از الکترون و حفره در نیمه‌رساناها هستند، به‌ویژه در مواد آلی نظیر مولکول‌های رنگدانه سیانین با انباشت π از ویژگی‌هایی همانند پهنای باند جذب باریک (قدرت نوسانگری بالا) و پایداری در دمای اتاق برخوردارند [۱۶]. چنین ویژگی‌هایی باعث شده‌اند که اکسایتون‌ها، گزینه‌ای آرمانی برای ترکیب با پلاسمون‌ها در سازه‌های آمیخته محسوب شوند. جفت‌شدگی میان اکسایتون‌ها و پلاسمون‌ها که در مقیاس زمانی فمتوثانیه اتفاق می‌افتد، می‌تواند به انتقال انرژی کارآمد، میان این دو مؤلفه منجر شود و موجب بهبود چشمگیر عامل کیفیت و پایداری حالت‌های برانگیخته اپتیکی گردد [۱۷].

در ساده‌ترین حالت، برهم‌کنش این اکسایتون‌ها و پلاسمون‌ها می‌تواند منجر به دو شاخه پلاریتونی بالا و پایین شود؛ که رفتار این سامانه را می‌توان با الگوهای کوانتومی ساده سازی کرد [۱۸]. این حالت‌های آمیخته (پلکسایتون‌ها) در کاربردهایی مانند لیزرهای پلاریتونی، سوئیچ‌های نوری و پردازش کوانتومی اطلاعات اهمیت ویژه‌ای دارند [۱۹-۲۱]. در جفت‌شدگی قوی، تبادل انرژی همدوس بین اکسایتون‌ها و پلاسمون‌ها با نرخ بالایی شکل می‌گیرد و طیف انرژی آنها با شکافتگی رابی از هم متمایز می‌شوند [۲۲ و ۲۳].

مطالعه سامانه‌های چند حالتی نسبت به حالت‌های ساده دو ترازوی مزایای فراوانی دارد. الگوهای چند حالتی، تعداد شاخه‌های پلاریتونی تشکیل شده بیشتر و کانال‌های اتلاف انرژی متنوع‌تری دارند. در واقع چنین سامانه‌ای با فراهم کردن مسیرهای انتقال فوق سریع انرژی میان حالت‌های اپتیکی منجر به چندگانه شدن شکافتگی رابی و بیانگر پیچیدگی و قابلیت‌های کنترل طیفی بالا خواهند بود [۲۴-۲۸].

یکی از مؤلفه‌های کلیدی در طراحی سامانه‌های چندگانه، انتخاب زیرلایه‌ای است که علاوه بر فراهم کردن بستری پایدار برای قرارگیری نانو ساختارها، ویژگی‌های مطلوب نوری نیز ارائه کنند. در این میان، ساختار تک لایه‌ای مولیبدن دی‌سولفاید (MoS_2)، از خانواده اکسایتون‌های دی کالکوزناید، به دلیل خواص منحصربه‌فرد نوری به عنوان بستری عالی در برهم‌کنش با ساختارهای پلاسמוنی محسوب می‌شود. بر

خلاف حالت حجمی که MoS_2 یک نیمه‌رسانای غیرمستقیم است، در حالت تک‌لایه گاف انرژی آن به حدود $1/8$ تا $1/9$ الکترون‌ولت می‌رسد و تبدیل به نیمه‌رسانایی با گاف انرژی مستقیم می‌شود. این موضوع سبب قله‌های جذبی بسیار واضح و قوی (اکسایتون‌های A و B) در ناحیه مرئی می‌گردد که انتقال همدوس انرژی را تسهیل می‌کند [۲۹]. این ماده با انرژی بستگی مناسب، دارای پایداری نسبتاً بالای جفت الکترون-حفره و مشارکت آنها در برهم‌کنش با پلاسمون است. تک‌لایه MoS_2 دارای ضریب شکست نوری نسبتاً بالا در ناحیه مرئی و مادون قرمز نزدیک است، که باعث می‌شود میدان‌های الکترومغناطیس در نزدیکی سطح آن به‌خوبی متمرکز شوند. در مقایسه با زیرلایه‌های ضخیم‌تر، تک‌لایه MoS_2 ، میرایی‌های غیرقابل‌اجتناب ناشی از جذب داخلی را به حداقل می‌رساند [۳۰ و ۳۱]. همچنین امکان لایه‌نشانی دقیق به روش‌های شیمیایی و مکانیکی برای تهیه تک‌لایه‌های MoS_2 (با ضخامت 0.615 نانومتر) مزیت مهمی در به کارگیری این ماده در ساختارهای آمیخته محسوب می‌شود [۳۲ و ۳۳].

در این پژوهش، به مطالعه یک نانو ساختار کاملاً مهندسی شده می‌پردازیم که شامل یک قرص از جنس فلز نقره و یک قرص از مولکول‌های سیانین است که به‌صورت هم‌مرکز بر روی یک زیرلایه گسترده تک‌لایه‌ای از مولیبدن دی‌سولفاید (MoS_2) قرار گرفته است. در این سامانه، برهم‌کنش میان حالت پلاسמוنی نقره با سه مد اکسایتونی سیانین، و همچنین جفت‌شدگی مرحله‌ای بین حالت‌های آمیخته حاصل شده با دو حالت اکسایتونی A و B زیرلایه MoS_2 مورد تحلیل دقیق قرار گرفته است. در این ساختار پیشنهادی، یک شبه‌ذره فوق آمیخته با ماهیت اکسی‌پلاستونی شکل گرفته که به‌صورت مرحله‌ای از برهم‌کنش اولیه پلاسمون با اکسایتون‌های سیانین و سپس جفت‌شدگی ثانویه شاخه پایینی آن با اکسایتون‌های A و B مولیبدن دی‌سولفاید پدید آمده است. این نوع اکسی‌پلاستون که از زنجیره جفت‌شدگی متوالی شکل می‌گیرد، از نظر ساختاری با حالت‌های کلاسیک چندگانه تفاوت‌هایی دارد، اما ویژگی‌های طیفی و کوانتومی مشابهی بروز می‌دهد. هدف از این پژوهش، تحلیل کمی و نظری از سازوکار جفت‌شدگی

حالت‌ها است و با اندازه‌گیری کل پهنا در نصف بیشینه (FWHM)، قله‌های مربوطه در طیف خاموشی مشخص می‌شوند. عناصر غیر قطری این ماتریس، بیانگر جفت‌شدگی میان حالت‌های اولیه پلاسمونی و اکسایتونی است. به این ترتیب با توجه به هامیلتونی، فرض بر آن است که حالت‌های اکسایتونی با یکدیگر هیچ‌گونه جفت‌شدگی ندارند و مؤلفه‌های متناظر با آنها صفر در نظر گرفته شده است. همچنین در چنین سامانه‌ای می‌توان فرض کرد پلاسمون‌های نقره با حالت‌های اکسایتونی لایه سیانین و زیرلایه جفت شده‌اند و تبادل انرژی بین این حالات رخ می‌دهد. می‌توانیم با قطری کردن و دستیابی به ویژه مقادیر این هامیلتونی، انرژی حالت‌های اکسی‌پلاستونی حاصل را استخراج کنیم [۳۴].

برای درک بهتر موضوع، یک سامانه ساده دو ترازی شامل یک پلاسمون و یک اکسایتون را در نظر بگیرید. هامیلتونی این سامانه به شکل زیر خواهد بود:

$$\begin{pmatrix} E_{pl} - i\Gamma_{pl}/2 & g \\ g & E_x - i\Gamma_x/2 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \alpha \\ \beta \end{pmatrix} = E \begin{pmatrix} \alpha \\ \beta \end{pmatrix} \quad (2)$$

در این وضعیت با قطری‌سازی و بدست آوردن ویژه مقادیر این هامیلتونی، محل راس قله‌های طیف آمیخته بدست خواهد آمد:

$$E_{\pm} = \frac{1}{2}(E_{pl} + E_x) - \frac{i}{2}(\Gamma_{pl} + \Gamma_x) \pm \sqrt{g^2 + \left(\delta - \frac{i}{2}(\Gamma_{pl} - \Gamma_x)\right)^2} \quad (3)$$

که در آن δ بسامد واکوکی (اختلاف انرژی حالت پلاسمونی و اکسایتونی) است. α و β مربوط به هر ویژه مقدار با عنوان ضرایب هاپفیلد شناخته شده و می‌توانند سهم هر حالت اولیه را در شکل‌گیری حالت‌های جفت شده، بیان کنند. اختلاف این دو حالت آمیخته متوالی با عنوان انرژی شکافتگی رابی شناخته می‌شود و در حالت واکوکی صفر، مساوی با دو برابر مقدار جفت‌شدگی میان دو حالت اولیه است [۳۵].

انتظار داریم در تحلیل طیف انرژی حالت‌های اولیه و جفت‌شده بر حسب تابعی از پارامتر متغیر ساختاری، در محلی که قله‌های پلاسمونی با قله‌های اکسایتونی تقاطع دارند، شاهد یک شکافتگی رابی (رفتار غیر متقاطع) باشیم که مشخصه جفت‌شدگی قوی میان حالت‌های اپتیکی است. ممکن است مسیر جفت‌شدگی میان حالت‌های اولیه به سادگی که پیش از این بحث شد رخ ندهد. به طور مثال با توجه به

مرحله‌ای در یک ساختار اکسایتون-پلاسمون-اکسایتون و مطالعه تأثیر روند تغییرات پارامترهای ساختاری، همچون اندازه قطر نانوذرات و ضخامت قرص‌ها بر شکافتگی رابی ناشی از جفت‌شدگی قوی میان حالت‌های اولیه است.

ساختارهای پیچیده‌تر چندحالتی، چشم‌اندازهای نوینی برای فناوری‌های نانومقیاس اپتیکی و کوانتومی فراهم می‌کنند. توانایی تشکیل همزمان چند حالت پلکسایتونی، راهگشای ساخت لیزرهای کم‌آستانه پلاریتونی، منابع نور کوانتومی و سوئیچ‌های نوری پیشرفته است. همچنین وجود چندین حالت اکسایتونی و پلاسمونی امکان طراحی حسگرهای بسیار حساس و کنترل دقیق انتشار نور در مدارهای نانوفوتونیک را می‌دهد. به‌ویژه، استفاده از این قابلیت‌ها در مهندسی نانوساختارها می‌تواند امکانات جدیدی برای درهم‌تنیدگی چندحالتی و پیاده‌سازی گیت‌های کوانتومی پیچیده ایجاد کند. در مجموع، بررسی برهم‌کنش‌های چندحالتی، دیدگاه ما را نسبت به کنترل رفتار نور در مقیاس نانو گسترش داده و راه را برای کاربردهای پیشرفته در اپتوفوتونیک و رایانش کوانتومی هموار می‌سازد.

۲. مبانی نظری

برای توصیف یک سامانه اپتیکی شامل تشدید پلاسمونی که با حالت پایه $|p\rangle$ نشان داده می‌شود و سه حالت اکسایتونی که یکی باند z مربوط به مولکول‌های سیانین و دو تای دیگر اکسایتون‌های فرعی مربوط به الگوسازی نوسانگری اکسایتون هستند که به ترتیب با $|z_1\rangle$ و $|z_2\rangle$ و $|z_3\rangle$ نشان داده می‌شوند. افزون بر این، حالت‌های برانگیخته اکسایتونی مولیبدن‌دی‌سولفاید نیز با $|A\rangle$ و $|B\rangle$ معرفی می‌شوند. برای الگوسازی این برهم‌کنش‌های چندگانه، می‌توانیم از هامیلتونی کلی 6×6 به شکل ماتریسی زیر استفاده کنیم:

$$H^{full} = \begin{pmatrix} E_p - i\Gamma_p/2 & g_{j_1,p} & g_{j_2,p} & g_{j_3,p} & g_{A,p} & g_{B,p} \\ g_{j_1,p} & E_{j_1} - i\Gamma_{j_1}/2 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ g_{j_2,p} & 0 & E_{j_2} - i\Gamma_{j_2}/2 & 0 & 0 & 0 \\ g_{j_3,p} & 0 & 0 & E_{j_3} - i\Gamma_{j_3}/2 & 0 & 0 \\ g_{A,p} & 0 & 0 & 0 & E_A + i\Gamma_A/2 & 0 \\ g_{B,p} & 0 & 0 & 0 & 0 & E_B - i\Gamma_B/2 \end{pmatrix} \quad (1)$$

که در آن E_i انرژی تشدید حالت‌های اولیه پلاسمونی و اکسایتونی بوده (راس قله‌ها) و Γ_i بیانگر نرخ اتلاف در این

$$g_{p,A} = \langle p | H^{full} | A \rangle \quad (10)$$

$$g_{J_i,A} = \langle J_i | H^{full} | A \rangle \quad (11)$$

می‌توان درباره سهم هر یک از حالت‌های اولیه پلاسمونی و اکسایتونی‌های سیانین در این جفت‌شدگی بحث کرد به‌طوری که:

$$g_{-,A} = \alpha g_{p,A} + \sum_{k=1}^3 \beta_k g_{J_k,A} \quad (12)$$

با چنین تعریفی انتظار داریم در طیف اکسی‌پلاستونی شبیه سازی شده با شش درجه آزادی (مربوط به سه حالت اکسایتونی سیانین و یک حالت پلاسمونی نقره و دو حالت اکسایتونی MoS_2)، ویژه مقادیر هامیلتونی کل (H^{full}) دقیقاً بیانگر انرژی راس قله‌های آمیخته شکل گرفته در طیف خاموشی باشد؛ اما باید دقت داشت با فرض جفت‌شدگی ترتیبی، شکافتگی رابی به‌دست آمده از طیف‌های آمیخته مستقیماً بیانگر عناصر غیرقطری (جفت‌شدگی) در هامیلتونی دو مرحله‌ای هستند (نه عناصر غیرقطری در هامیلتونی کل).

بنابراین، به‌عنوان روشی ساده برای پیش‌بینی وقوع جفت‌شدگی ترتیبی یا همزمان بین حالت‌های اولیه می‌توانیم نمودار رفتار غیر متقاطع انرژی حالت‌های اولیه را مطالعه کنیم. چنانچه شکافتگی رابی در محل تقاطع انرژی حالت پلاسمونی اولیه با حالت‌های اکسایتونی رخ نداده باشد می‌بایست به تحلیل جفت‌شدگی ترتیبی بپردازیم که در بخش نتایج و بحث این موضوع به‌طور دقیق بررسی می‌شود.

۳. روش محاسباتی

برای الگوسازی و مطالعه ساختار پیشنهادی، برهم‌کنش نور و نانوذره به روش شبیه‌سازی امان محدود در حوزه زمان بررسی شده و حل عددی معادلات ماکسول به وسیله بسته نرم افزاری لومریکال انجام گرفت. در این بررسی گام مش بندی ساختارها در هر سه راستای x و y و z، ۲۵ نانومتر تنظیم و شرط مرزی جاذب در اطراف سامانه لحاظ شد.

اندازه نانوذرات همواره به صورتی است که لبه قرص سیانین بالایی از لبه قرص نقره زیرین ۳ نانومتر فاصله داشته باشد؛ به این ترتیب قطر قرص بالایی همواره ۶ نانومتر از قرص پایینی کوچکتر است.

ساختار هندسی مورد مطالعه قله‌های پلاسمونی با یک دسته از اکسایتون‌ها (که احتمالاً تمایل بیشتری برای جفت شدن نشان داده و ذاتاً نوسانگر قوی‌تری هستند)، در مرحله اول جفت شوند و یک (یا حتی چند) حالت آمیخته اولیه در مرحله بعد با سایر مدهای اکسایتونی جفت‌شدگی ثانویه‌ای را رقم بزنند. بنابراین، هامیلتونی چنین سامانه‌ای را می‌توان به شکل زیر در نظر گرفت:

الف) هامیلتونی اولیه شامل جفت‌شدگی پلاسمون نقره و حالت‌های اکسایتونی سیانین :

$$H^{(1)} = \begin{pmatrix} E_p - i\Gamma_p/2 & g_{J1,p} & g_{J2,p} & g_{J3,p} \\ g_{J1,p} & E_{J1} - i\Gamma_{J1}/2 & 0 & 0 \\ g_{J2,p} & 0 & E_{J2} - i\Gamma_{J2}/2 & 0 \\ g_{J3,p} & 0 & 0 & E_{J3} - i\Gamma_{J3}/2 \end{pmatrix} \quad (4)$$

ب) هامیلتونی ثانویه در پایه $|\psi\rangle$ ویژه بردار متناظر با شاخه آمیخته با انرژی کمتر $H^{(1)}$ و حالت‌های اکسایتونی MoS_2 :

$$H^{(2)} = \begin{pmatrix} E_- - i\Gamma_-/2 & g_{-,A} & g_{-,B} \\ g_{-,A} & E_A - i\Gamma_A/2 & 0 \\ g_{-,B} & 0 & E_B - i\Gamma_B/2 \end{pmatrix} \quad (5)$$

که در آن :

$$g_{-,A} = \langle \psi | H^{full} | A \rangle \quad (6)$$

و

$$g_{-,B} = \langle \psi | H^{full} | B \rangle \quad (7)$$

بیانگر جفت‌شدگی موثر حالت‌های اکسایتونی A و B با یکی از حالت‌های آمیخته ناشی از جفت‌شدگی اولیه خواهد بود و لزوماً با $g_{A,p}$ و $g_{B,p}$ در هامیلتونی کل برابر نیست چرا که جفت‌شدگی‌های ثانویه موثر نه تنها ناشی از حالت‌های پلاسمونی، بلکه سهمی از حالت‌های اکسایتونی سیانین در آن واقع می‌شود. برای بررسی کمی این موضوع می‌توان پس از قطری کردن هامیلتونی $H^{(1)}$ و محاسبه ویژه مقادیر و ویژه بردارهای آن، حالت با انرژی کمتر را به صورت ترکیب خطی حالت‌های اولیه آن به صورت زیر نوشت :

$$|\psi\rangle = \alpha |p\rangle + \sum_{k=1}^3 \beta_k |J_k\rangle \quad (8)$$

با قرار دادن این رابطه در:

$$g_{-,A} = \langle \psi | H^{full} | A \rangle \quad (9)$$

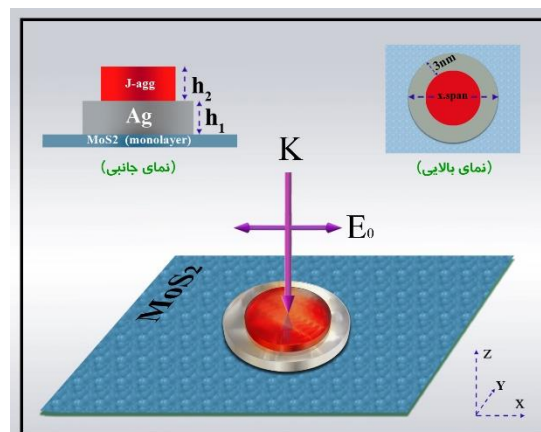
و در نظر گرفتن:

این نانوذره دو لایه‌ای بر روی یک تک لایه وسیع از جنس مولیبدن دی سولفاید بلافاصله در صفحه $x-y$ واقع می‌شود. نور تابشی در طول موج‌های ۲۰۰ تا ۱۰۰۰ نانومتر بر این ساختار به وسیله یک منبع نوری موج تخت که راستای تابش آن در جهت محور Z است به طور عمودی می‌تابد؛ به طوری که میدان الکتریکی آن در راستای محور x باشد (شکل ۱).

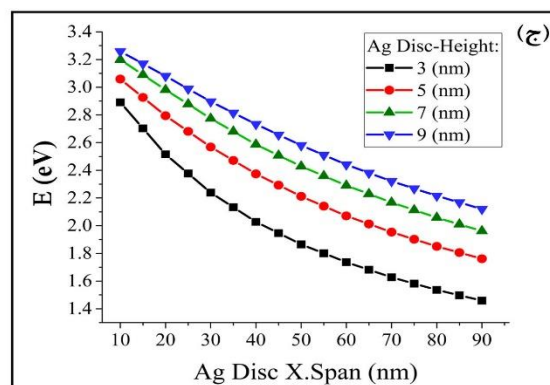
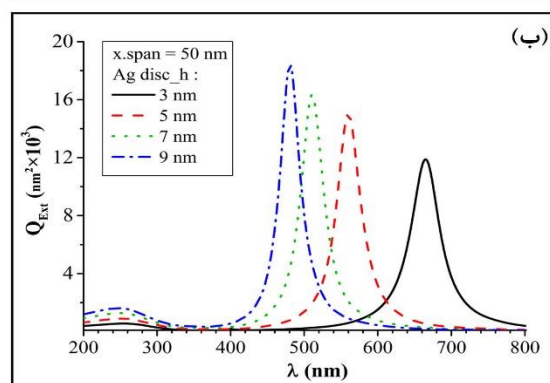
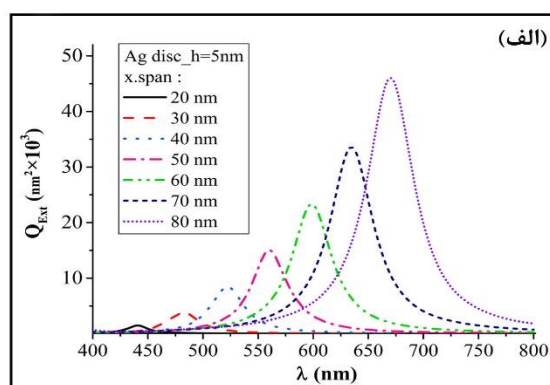
به منظور تحلیل انرژی و نرخ اتلاف حالت‌های اپتیکی اولیه و جفت شده، پس از تابش و برهم‌کنش نور با هر یک از ساختارهای شبیه سازی شده از طیف حاصل جمع سطح مقطع پراکندگی و جذب، که سطح مقطع خاموشی نامیده می‌شود، بر حسب تابعی از طول موج تابشی استفاده می‌نماییم. طول موج تشدید پلاسمونی و کلیه برانگیختگی حالت‌های اپتیکی دقیقاً همان انرژی راس قله‌های رخ داده در این طیف خواهد بود و پهنای قله‌ها بیانگر نرخ اتلاف در این حالت‌ها است.

۴. نتایج و بحث

به منظور بررسی مؤلفه‌های اولیه ساختار، در قدم نخست طیف خاموشی یک نانوقرص نقره در خلاء با ضخامت ۵ نانومتر و قطرهای مختلف از ۲۰ تا ۸۰ نانومتر بر حسب طول موج نور تابشی در شکل ۲. الف نشان داده شده است. با افزایش قطر نانوذره فلزی، قله‌های مربوط به تشدید پلاسمونی با یک روند نسبتاً خطی و منظم از ۴۴۰ نانومتر تا ۶۷۰ نانومتر جابه‌جایی قرمز داشت و به تدریج پهنای قله‌ها کاهش و شدت قله‌ها افزایش یافته است. در حقیقت هنگامی که قطر نانوذره فلزی بزرگتر می‌شود فرض تقریب شبه استاتیک ضعیف شده و بخش‌های مختلف ذره، میدان نوری را با تاخیر فازی متفاوت می‌بیند؛ این تاخیر باعث می‌شود نیروی بازگرداننده روی الکترون‌ها تضعیف شود و تشدید پلاسمونی در انرژی‌های پایین‌تر رخ دهد. همچنین با افزایش اندازه نانوذره نسبت سطح به حجم کاهش یافته و میرایی سطحی کاهش پیدا می‌کند. بنابراین، کانال اتلاف کاهش و پهنای قله تشدید پلاسمونی کاهش می‌یابد. برای بررسی تاثیر ضخامت قرص نقره بر حالت‌های پلاسمونی، در شکل ۲. ب ضخامت قرص را در یک قطر ثابت ۵۰ نانومتری از ۳ تا ۹ نانومتر تغییر دادیم.



شکل ۱. طرحی از نانوذره قرصی دولایه‌ای واقع بر بستر MoS_2 .

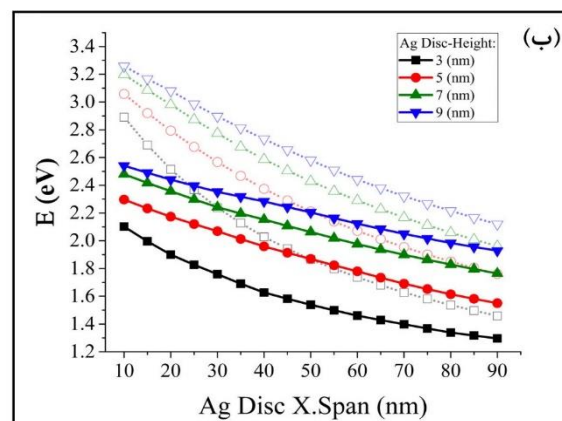
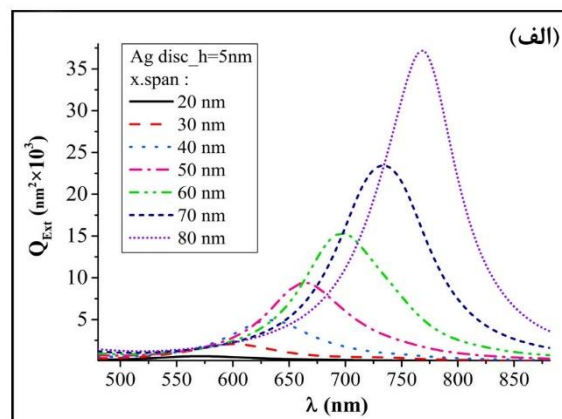


شکل ۲. بررسی رفتار پلاسمونی قرص نقره بدون زیر لایه و در خلاء با الف) تغییر قطر قرص، ب) تغییر ضخامت قرص و ج) مقایسه انرژی حالت‌های پلاسمونی.

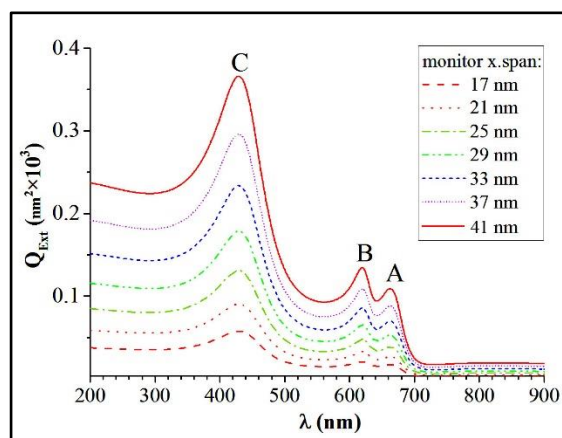
چرا که با نوسان هماهنگ در حجم بزرگتر، اثر توزیع ناهمافاز میدان کاهش پیدا کرده و به سمت یک مقدار اشباع شده متمایل می‌گردد. همچنین قله‌های پلاسمونی در این روند در اندازه‌های بزرگتر همچنان به علت کاهش برخورد الکترون‌ها به مرزهای سطحی، پهنای کمتری را نشان دادند. در این بررسی تطبیقی، شکل ۲. ج نمایش دهنده انرژی قله‌های پلاسمونی نقره برای ضخامت ۳ تا ۹ نانومتر در قطرهای مختلف است. همان‌طور که انتظار داریم با افزایش قطر در هر چهار ضخامت جابه‌جایی قرمز و با تغییر ضخامت جابه‌جایی آبی برای برانگیختگی پلاسمونی رخ می‌دهد. با دقت در این نمودار مشخص شد هر چه ضخامت قرص بیشتر باشد، روند تغییرات انرژی بر حسب قطر خطی‌تر می‌شود.

باید به این نکته مهم توجه داشت که در این پژوهش نانوذرات قرصی بر روی یک صفحه وسیع از مولیبدن دی سولفاید واقع می‌شود. در حقیقت، محیط اطراف نانوذرات دیگر خلاء نیست، بلکه زیرلایه‌ای با ضریب شکست بالای از تک‌لایه MoS_2 است. بنابراین برانگیختگی پلاسمونی نانوذره تحت تأثیر این محیط جدید قرار می‌گیرد و به‌صورت چشم‌گیری به سمت طول موج‌های بلندتر تغییر می‌کند. از این‌رو، برای تحلیل دقیق طیف‌ها باید از قله‌های اولیه پلاسمونی که تحت تأثیر محیط میزبان جدید قرار گرفته، استفاده کنیم. برای این منظور در یک شبیه‌سازی ثانویه، تنها تغییرات دینامیکی ناشی از ضریب شکست MoS_2 در محل قله پلاسمونی استفاده شد و موقتاً اثرات جذب و جفت‌شدگی با اکسایتون‌های A و B حذف گردید. شکل ۳ نتایج این بررسی را نشان می‌دهد.

با توجه به شکل ۳. الف، مشخص می‌شود که قله‌های نقره تحت تأثیر ضریب شکست محیط میزبان دچار یک جابه‌جایی قرمز شده و پهنای آن افزایش و شدت قله‌ها نسبت به خلاء کاهش یافته است. همچنین در شکل ۳. ب مقایسه انرژی این حالت‌ها برای اندازه‌های مختلف از ۱۰ تا ۹۰ نانومتر و ضخامت‌های ۳ تا ۹ نانومتر نسبت به وضعیتی که قرص در خلاء واقع باشد صورت گرفته است. مطابق نتایج، جابه‌جایی قرمز بین خطوط نقطه چین و خطوط پر رنگ به وضوح دیده می‌شود. همچنین شیب این خطوط نسبت به قبل دچار کاهش نسبی شده است.

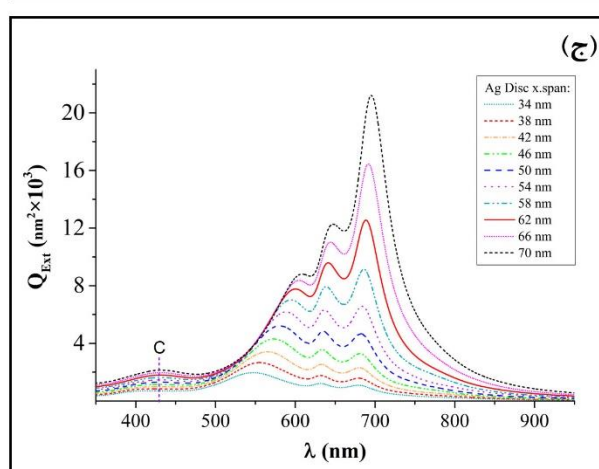
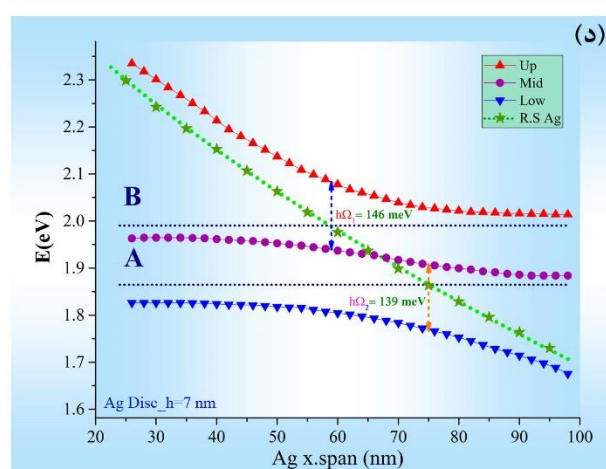
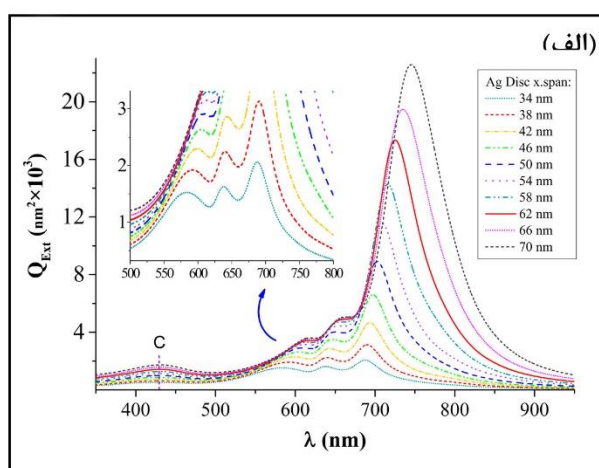
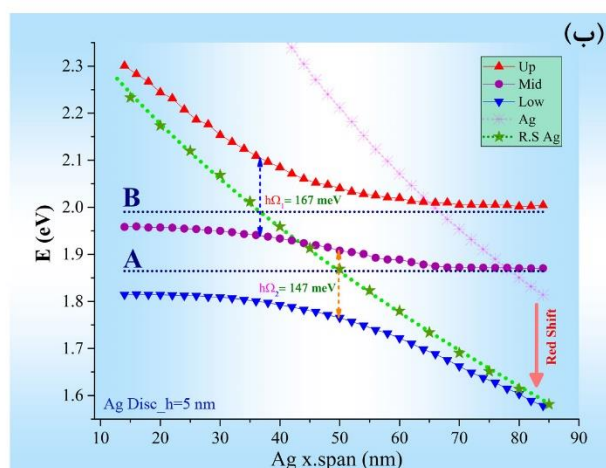


شکل ۳. الف) روند حالت‌های تشدید پلاسمونی نقره در محیط خلاء در حضور صفحه بزرگ MoS_2 با ضریب شکست بالا تحت نانوقرص. ب) انرژی حالت‌های پلاسمونی برای پارامترهای ساختاری مختلف در خلاء (نقطه‌چین کمرنگ) و محیط شامل زیر لایه MoS_2 (خطوط پررنگ و نقاط توپر).



شکل ۴. سطح مقطع خاموشی صفحه تک لایه مولیبدن دی سولفاید بر حسب طول موج نور فرودی.

به این ترتیب قله‌های پلاسمونی با افزایش ضخامت قرص یک جابه‌جایی آبی از ۶۶۵ تا ۴۸۱ نانومتر را تجربه کردند. به‌طوری‌که شیب تغییرات با افزایش ضخامت کاهش یافت؛



شکل ۵. جفت‌شدگی حالت پلاسمونی قرص نقره با حالات اکسایتونی صفحه تک لایه MoS₂. (الف) طیف خاموشی حالات جفت‌شده برای قرص نقره با ضخامت ۵ نانومتر. (ب) نمودار انرژی حالات بر حسب اندازه قطر قرص نقره با ضخامت ۵ نانومتر. (ج) طیف خاموشی حالات جفت‌شده برای قرص نقره با ضخامت ۷ نانومتر. (د) نمودار انرژی حالات بر حسب اندازه قطر قرص نقره با ضخامت ۷ نانومتر.

با این وجود زیر لایه مولیبدن دی سولفاید به عنوان یک لایه دی‌الکتریک فعال شامل یک رفتار اکسایتونی بسیار مهم است که بررسی طیف آن نیز در شکل ۴ صورت گرفته است. در این شکل که طیف خاموشی لایه زیرین نانوذره نقره را در طول موج‌های نور تابشی از ۲۰۰ تا ۹۰۰ نانومتر نشان می‌دهد. با دقت در این نمودار سه قله کاملاً مشخص A و B و C به خوبی دیده می‌شوند که با تغییر ابعاد ناحیه مورد بررسی صرفاً شدت آن افزایش یافته و محل برانگیختگی آن به ترتیب در طول موج‌های ۶۲۳ و ۶۶۵ و ۲۳۰ نانومتر ثابت باقی مانده است. از میان این حالت‌های اکسایتونی، حالت A و B به شکل فعال با سایر مؤلفه‌های سامانه جفت‌شدگی نشان می‌دهد و قله C که پهنای بیشتری هم دارد، عموماً با تغییرات اندک در محل خود ثابت باقی می‌ماند. البته برای تحلیل دقیق‌تر رفتار این قله که در

طول موج‌های پایین رخ داده، می‌بایست نانوذراتی با ابعاد بسیار کوچک شبیه سازی شوند تا قله‌های پلاسمونی همپوشانی کافی با این ناحیه داشته باشند که در این پژوهش از این موضوع صرف نظر شده است. همان‌طور که در این شکل به خوبی مشخص است، شدت قله‌های اکسایتونی A و B در مقایسه با قله‌های پلاسمونی نقره بسیار بسیار ضعیف تر هستند. در بررسی جفت‌شدگی حالت‌های پلاسمونی و اکسایتونی، در مرحله اول برهم‌کنش حالت‌های پلاسمونی یک قرص نقره واقع بر یک زیر لایه وسیع MoS₂ مطالعه شد. برای این منظور قطر یک قرص نقره با ضخامت ۵ نانومتر از ۱۴ تا ۸۴ نانومتر تغییر داده و همپوشانی حالت‌های پلاسمونی و اکسایتونی مورد بررسی قرار گرفت.

با این وجود زیر لایه مولیبدن دی سولفاید به عنوان یک لایه دی‌الکتریک فعال شامل یک رفتار اکسایتونی بسیار مهم است که بررسی طیف آن نیز در شکل ۴ صورت گرفته است. در این شکل که طیف خاموشی لایه زیرین نانوذره نقره را در طول موج‌های نور تابشی از ۲۰۰ تا ۹۰۰ نانومتر نشان می‌دهد. با دقت در این نمودار سه قله کاملاً مشخص A و B و C به خوبی دیده می‌شوند که با تغییر ابعاد ناحیه مورد بررسی صرفاً شدت آن افزایش یافته و محل برانگیختگی آن به ترتیب در طول موج‌های ۶۲۳ و ۶۶۵ و ۲۳۰ نانومتر ثابت باقی مانده است. از میان این حالت‌های اکسایتونی، حالت A و B به شکل فعال با سایر مؤلفه‌های سامانه جفت‌شدگی نشان می‌دهد و قله C که پهنای بیشتری هم دارد، عموماً با تغییرات اندک در محل خود ثابت باقی می‌ماند. البته برای تحلیل دقیق‌تر رفتار این قله که در

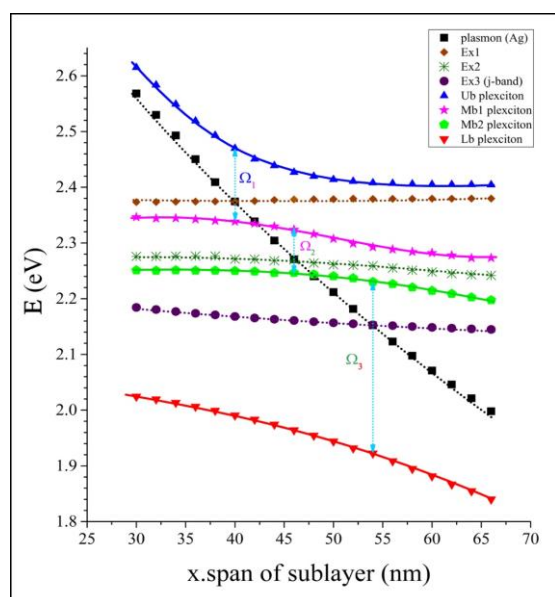
در شکل ۵. الف، طیف جفت شده (پلکسایتونی) این حالت‌ها به تصویر کشیده شده است. همان‌گونه که در این نمودار دیده می‌شود در اندازه‌های کوچکتر قرص، سه قله با شدت‌های نزدیک به هم شکل گرفته که ناشی از یک حالت پلاسمونی نقره و دو قله A و B MoS_2 است؛ که رفته رفته شدت قله سمت راست (شاخه پایینی) افزایش می‌یابد. در شکل ۵. ب منحنی‌های انرژی حالت‌های اولیه و جفت شده سامانه بر حسب اندازه قطر قرص نقره (پارامتر ساختاری متغیر) رسم شده است. همان‌طور که در شکل دیده می‌شود حالت اکسایتونی A و B به ترتیب در انرژی‌های $1/864$ و $1/990$ الکترون ولت واقع شدند که در نمودار به صورت خط چین ترسیم شده است. محل تقاطع منحنی مربوط به قله‌های قرص نقره در خلاء (که با ستاره به رنگ صورتی مشخص شده) در اندازه قطر 66 و 78 نانومتر رخ می‌دهد. اما علی‌رغم انتظار، شکافتگی رابی حول این نقاط اتفاق نیفتاد و رفتار غیر متقاطع حول محل تقاطع منحنی نقره جابه‌جایی قرمز یافته (که پیش از این در شکل ۳ مورد بحث قرار گرفت) ایجاد شده است.

همان‌گونه که در شکل مشاهده می‌شود در اندازه 37 نانومتر، قله پلاسمونی دقیقاً منطبق بر اکسایتون B بوده و یک شکافتگی رابی به اندازه 167 میلی الکترون ولت در این اندازه رخ داده است. همچنین در اندازه 50 نانومتری راس قله پلاسمونی با حالت اکسایتونی A که در انرژی پایین‌تری قرار دارد، منطبق می‌شود و در این اندازه، یک انرژی شکافتگی رابی به اندازه 147 میلی الکترون ولت اندازه گیری شد. در شکل ۵. ج، همین بررسی برای یک قرص نقره این‌بار با ضخامت 7 نانومتر صورت پذیرفت. همان‌طور که در این نمودار قابل مشاهده است قله‌های حاصل شده در طیف آمیخته دارای پهنای کمتری نسبت به حالت قبل هستند. این پدیده ناشی از کم شدن پهنای قله‌های نقره و کاهش نرخ اتلاف در ضخامت بیشتر است که پیش از این مورد بحث قرار گرفت. همچنین با توجه به این‌که برانگیختگی‌های پلاسمونی برای قرص با ضخامت بیشتر، در انرژی‌های بالاتر رخ می‌دهد، محل تقاطع و شکافتگی رابی نیز در اندازه‌های بزرگتر ایجاد می‌شود. با توجه به شکل ۵. د، در اندازه قطر 59 نانومتری انرژی شکافتگی رابی برابر با 146

میلی الکترون ولت و در اندازه 75 نانومتری برابر با 139 میلی الکترون ولت است که شاهد کاهش شکافتگی رابی و متعاقباً کاهش جفت‌شدگی نسبت به حالت با ضخامت کمتر هستیم. مؤلفه اکسایتونی دیگر در ساختار مورد بررسی قرص سیانین است که برای تحلیل حالت‌های جفت‌شده آن لازم است ابتدا به صورت منفرد مورد بررسی قرار بگیرد (شکل ۶).

با توجه به شکل ۶. الف، شاهد روند تغییرات قله J (اکسایتون اصلی سیانین) در ضخامت ثابت قرص 5 نانومتر و قطر متغیر از 20 تا 60 نانومتر هستیم. همان‌طور که ملاحظه می‌شود یک جابه‌جایی قرمز بسیار کوتاه از طول موج 565 تا 578 نانومتر برای راس قله‌های اکسایتونی رخ داده و با این روند شدت قله‌ها افزایش و پهنای آن کاهش یافته است. در واقع وقتی قطر قرص سیانینی بزرگ‌تر می‌شود، افزایش مشارکت جمعی مولکول‌ها منجر به تقویت اثر دی‌الکتریک محیطی و کاهش توان بازگردانده شدن الکترون-حفره‌ها می‌شود که مقداری قله J را به سمت طول موج‌های بلندتر (جابه‌جایی قرمز) می‌برد. هم‌زمان با بزرگ‌تر شدن قرص، نسبت لبه‌ها به سطح کاهش یافته و پراکندگی غیریک‌نواخت کمتر می‌شود، در نتیجه، شدت قله بیشتر و پهنای آن باریک‌تر می‌گردد.

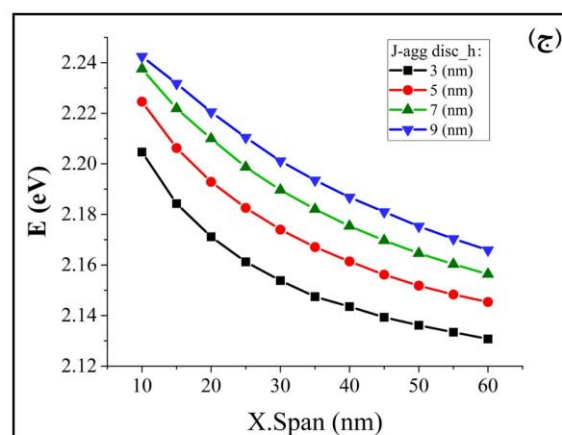
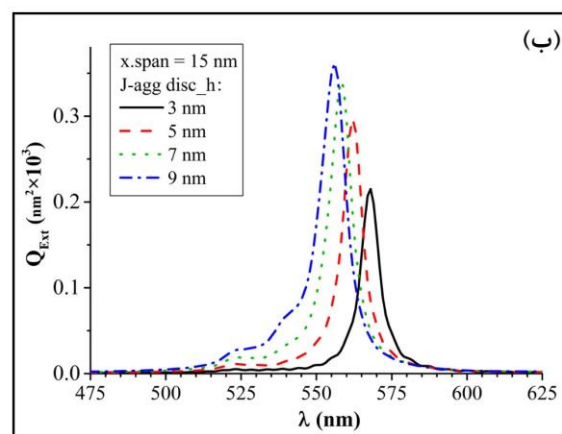
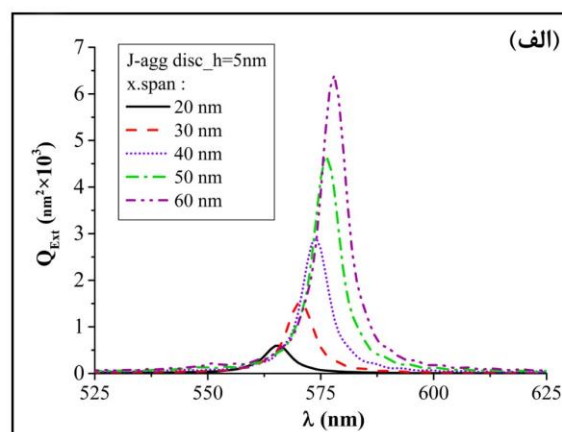
در شکل ۶. ب، یک قرص با قطر ثابت 15 نانومتر و ضخامت متغیر از 3 تا 9 نانومتر بررسی شده است. همان‌گونه که مشاهده می‌شود با افزایش ضخامت قرص سیانین، بر خلاف قرص نقره، شدت قله‌ها افزایش یافته و پهنای آن نیز افزایش می‌یابد. با این وجود یک جابه‌جایی آبی برای قله‌های اکسایتونی J -agg به وجود آمد. با افزایش ضخامت لایه J -agg میدان دی‌الکتریک داخلی تقویت می‌شود و انرژی بستگی (انرژی لازم برای جدا کردن الکترون و حفره) کاهش می‌یابد و با افزایش اثر پوششی، برانگیختگی در انرژی‌های بالاتر (جابه‌جایی آبی) اتفاق می‌افتد. در قرص نقره، حالت پلاسمونی از نوسان جمعی انبوهی از الکترون‌های رسانش پدید می‌آید که عمق نفوذ محدودی دارد، یعنی وقتی ضخامت از چند نانومتر فراتر می‌رود، الکترون‌های اضافی داخل فلز نقشی در تابش ندارد و تنها میرایی سطحی و اهمی کاهش می‌یابد.



شکل ۷. نمودار هشت شاخه‌ای حاصل از جفت‌شدگی سه مد اولیه اکسایتونی و مد پلاسمونی فلز نقره که سه شکافتگی رابی را به وجود آورده است [۳۶].

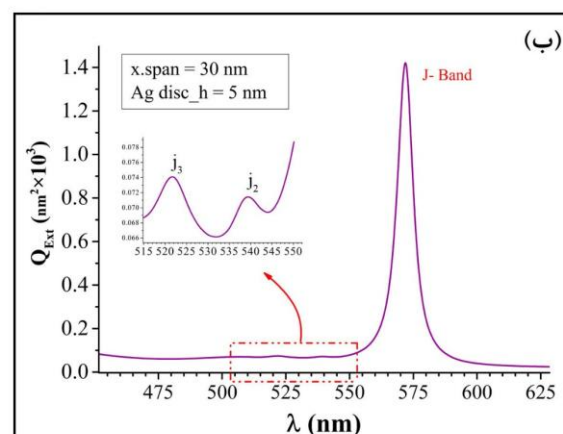
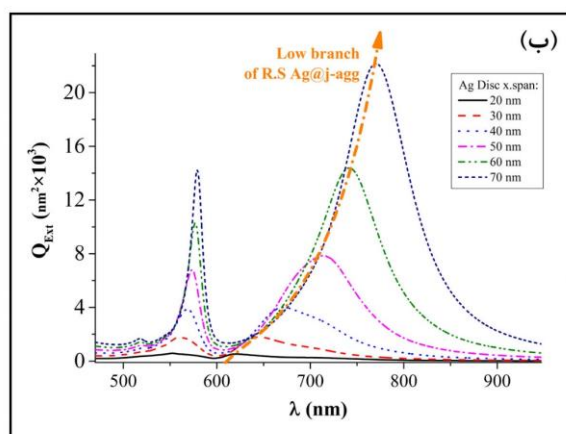
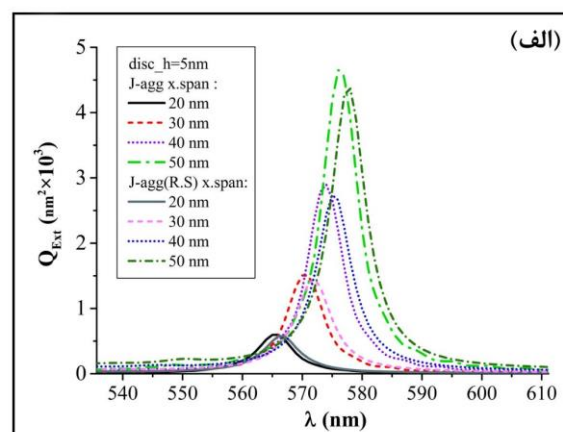
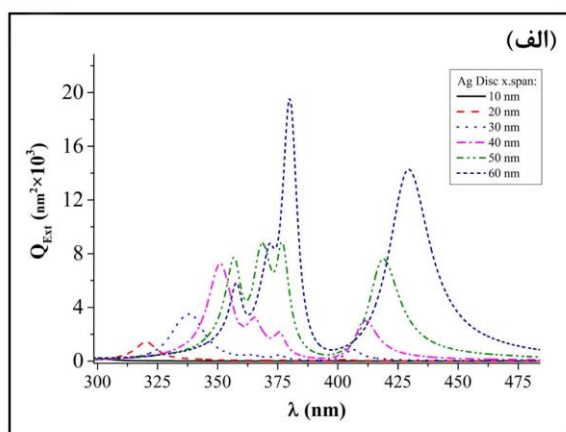
در شکل ۶. ج، روند تغییرات انرژی‌های برانگیختگی اکسایتونی سیانین با تغییر قطر قرص برای ضخامت‌های مختلف ۳ تا ۹ نانومتر بررسی شده است. همان‌گونه که در شکل دیده می‌شود با افزایش اندازه قطر قرص جابه‌جایی قرمز و با افزایش ضخامت جابه‌جایی آبی رخ داده است. همچنین به خوبی دیده می‌شود که با افزایش ضخامت، جابه‌جایی آبی به یک مقدار اشباع میل پیدا کرده و منحنی‌های مربوطه خطی‌تر می‌شوند.

از جفت‌شدگی میان حالت‌های اکسایتونی سیانین و پلاسمونی نقره شکافتگی رابی سه گانه رخ می‌دهد که در پژوهش‌های پیشین ما مورد تحلیل و بررسی کامل قرار گرفته بود (شکل ۷). اما همان‌گونه که پیش از این توضیح داده شد می‌بایست برای داشتن یک تحلیل صحیح از آنچه در حین جفت‌شدگی رخ می‌دهد، اثرات ضریب شکست محیط میزبان که شامل صفحه وسیع مولیبدن‌دی‌سولفاید است در محاسبات لحاظ شود. در شکل ۸. الف، برای یک قرص سیانین با ضخامت ۵ نانومتر سطح مقطع خاموشی بر حسب طول موج نور فرودی برای قطرهای ۲۰ تا ۵۰ نانومتر ترسیم شد. همان‌گونه که دیده می‌شود از لحاظ شدت، پهنا و راس قله‌ها تفاوت جزئی بین این دو حالت وجود دارد؛ البته با توجه به این‌که این قرص به اندازه ضخامت قرص نقره زیرین از زیرلایه فاصله می‌گیرد، کم بودن تغییرات ناشی از ضریب شکست محیط، دور از انتظار نیست.



شکل ۶. بررسی رفتار اکسایتونی قرص سیانین بدون زیر لایه و در خلاء با الف) تغییر قطر قرص، ب) تغییر ضخامت قرص و ج) مقایسه انرژی‌های اکسایتونی.

بنابراین ضخامت بیشتر باعث کاهش برخورد الکترون‌ها با مرز می‌شود و پهنای قله نازک‌تر می‌گردد، بدون آن‌که تابش افزایش یابد. در مقابل، در لایه J-aggregate هر مولکول یک دوقطبی تابشی مجزا دارد که با ضخامت بیشتر جمع آن‌ها قوی‌تر می‌شود؛ لذا ضخامت بیشتر در آن موجب تابش مؤثرتر و پهنای قله گسترده‌تر می‌شود.



شکل ۹. سطح مقطع خاموشی حالت جفت شده نقره و سیانین به صورت قرص دو لایه ای (با ضخامت هر قرص ۵ نانومتر) برای قطره های متغیر قرص نقره (در الف) خلاء بدون زیرلایه MoS_2 (ب) در حضور اثر ضریب شکست زیر لایه مولیبدن دی سولفاید.

چهار شاخه مشخص که با توجه به همپوشانی قله پلاسמוنی اولیه با قله های اکسایتونی سیانین در اندازه های مختلف سهم و شدت متفاوت نشان می دهند، به خوبی در این شکل دیده می شود.

با این وجود در شکل ۸ ب تفاوت چشم گیری در روند جفت شدگی برای همان نانوذره دو لایه ای، شامل قرص نقره و قرص سیانین رخ داده است؛ چرا که اثر حضور زیر لایه مولیبدن دی سولفاید بر ضریب شکست محیط پیرامون، لحاظ شده است. چنانکه موقتاً هیچ حالت اکسایتونی (از قبیل A و B) در ساختار وجود ندارد. در این شکل نیز روند تغییرات شاخه های آمیخته به خوبی قابل تشخیص و بررسی است. بنابراین، برای اندازه های نمایش داده شده در شکل ۹ ب، شدت و تمایز دو شاخه با انرژی پایین تر (که سهم بیشتری از حالت پلاسمونی نقره و اکسایتون باند J سیانین می برند) بیشتر است.

شکل ۸. الف) طیف خاموشی قرص سیانین در خلاء و در حضور اثرات محیطی زیر لایه مولیبدن دی سولفاید برای قطر ۲۰ تا ۵۰ نانومتر. (ب) طیف خاموشی قرص سیانین با قطر ۳۰ نانومتر و ضخامت ۵ نانومتر. در این شکل مشخص شد که قله های جابه جایی قرمز یافته سیانین از لحاظ راس قله، حدود ۲ نانومتر جابه جایی داشته و از لحاظ شدت، کمی ضعیف تر هستند. در شکل ۸ ب، که برای یک قرص منفرد سیانین جابه جایی قرمز یافته با قطر ۳۰ نانومتر ترسیم شده، می توانیم قله های فرعی اکسایتونی (j_2 و j_3) را در طول موج های پایین تر از قله اصلی مربوط به باند J رنگدانه های سیانین مشاهده کنیم. این قله ها هر چند در مقایسه با اکسایتون اصلی شدت بسیار کمی دارند اما در شرایط مناسب می توانند جفت شدگی قابل توجهی را با حالت پلاسمونی رقم بزنند.

در شکل ۹، حالت های جفت شده پلاسمون نقره و اکسایتون های سیانین را به کمک سطح مقطع خاموشی به نمایش در آوریم. در شکل ۹ الف، نانوذره دو لایه ای شامل قرص زیرین نقره با ضخامت ۵ نانومتر و قرص بالایی سیانین هم مرکز با آن با ضخامت ۵ نانومتر و همواره دارای قطری به اندازه ۶ نانومتر کمتر از قرص زیرین، در محیط خلاء بررسی شده است.

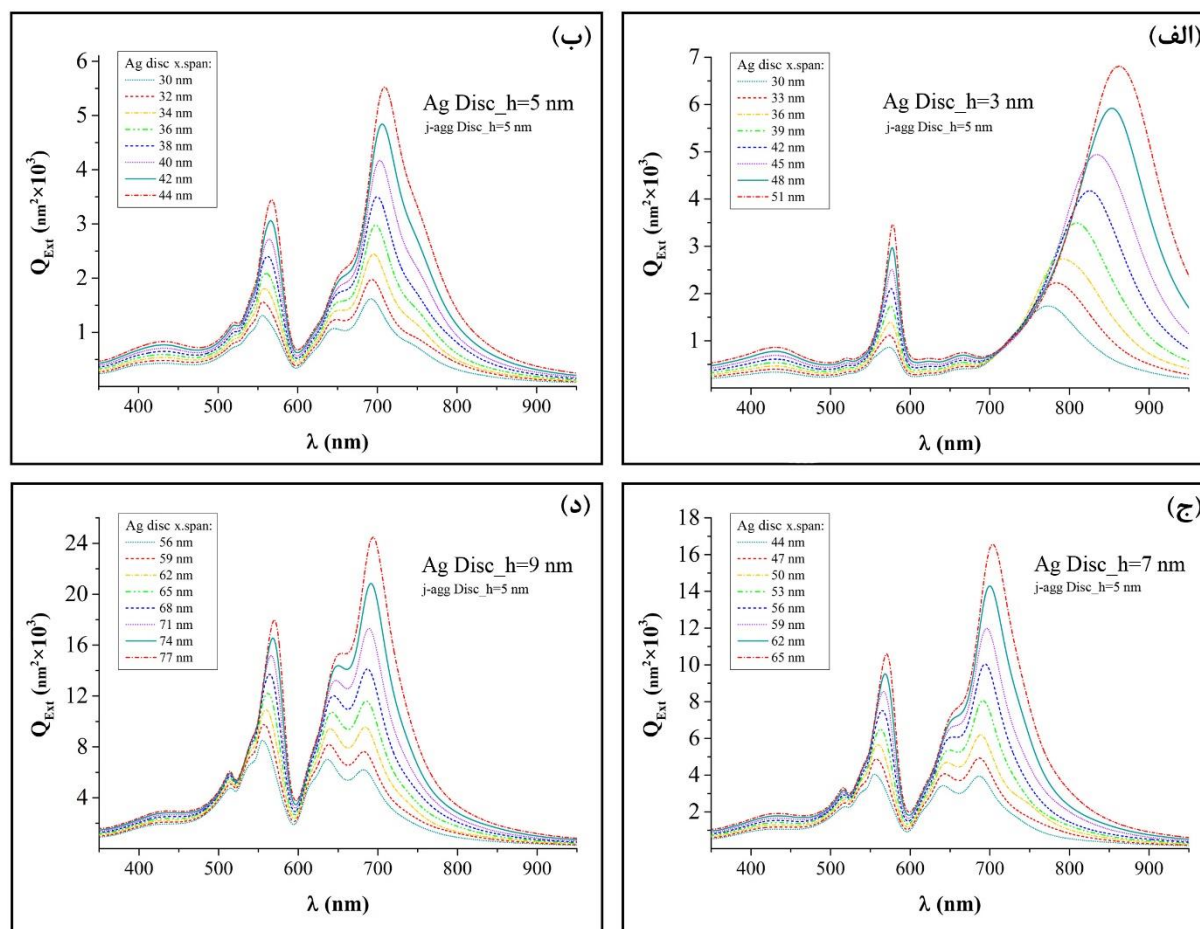
شاخه پایینی این حالت نقش کلیدی در تحلیل آنچه در ساختار سه مؤلفه‌ای اکسی‌پلاستونی مورد مطالعه رخ می‌دهد، ایفا می‌کند.

در ادامه به بررسی یک ساختار سه مؤلفه‌ای ناشی از قرص نقره، قرص سیانین بر روی آن و زیر لایه مولیبدن دی‌سولفاید می‌پردازیم. در شکل ۱۰، سطح مقطع خاموشی حالت‌های جفت شده اکسی‌پلاستونی برای چهار ضخامت ۳ تا ۹ نانومتر قرص نقره به تصویر درآمده است. همان‌طور که از مقایسه این چهار شکل مشخص است به طور کلی حالت‌های جفت شده برای قرص‌هایی با ضخامت بیشتر دارای پهنای قله کمتر بوده و تمایز قله‌های مجاور بیشتر است. به ویژه با توجه به حالت ایجاد شده در حوالی طول موج ۶۶۵ نانومتر که سهم اکسایتون A در آن بیشتر است، این مسئله به خوبی روشن می‌شود. همچنین با دقت در شاخه پایین این طیف می‌بینیم که به طور ملموس، رفته رفته از شکل الف تا شکل د قله‌ها باریکتر می‌شوند. این نکته از این واقعیت ناشی می‌شود که با افزایش ضخامت قرص نقره، ضمن این‌که قله‌ها به سمت انرژی‌های بالاتر منتقل می‌شدند، کانال اتلاف آنها نیز کاهش می‌یابد که این موضوع تاثیر چشم‌گیری بر حالت‌های ثانویه ایجاد شده داشته است.

در تمامی شکل‌ها یک دسته قله در طول موج ۴۳۰ نانومتر با پهنای زیاد دیده می‌شود که همان قله C در MoS_2 است و در اندازه‌های مورد بررسی، تمایلی برای جفت‌شدگی از خود بروز نمی‌دهد.

در شکل ۱۰، الف، قله‌های ساختاری شامل نانوذره نقره با ضخامت ۳ نانومتر، قرص سیانین و زیرلایه مولیبدن دی‌سولفاید ترسیم شده است. با دقت در این شکل مشخص می‌شود که از سمت طول موج‌های کمتر یک دسته قله با پهنای زیاد دیده می‌شود که همان قله C زیر لایه است. بعد از آن قله‌های ضعیف وجود دارد که ناشی از همان حالت‌های اکسایتونی فرعی سیانین است و سپس شاهد یک دسته قله باریک و مشخص هستیم که همچون قله‌های قبلی جابه‌جایی قابل توجهی از حالت منفرد اکسایتون باند J ندارد. پس از آن در طول موج‌های ۶۲۳ و ۶۶۵ نانومتر قله‌هایی متناظر با همان قله‌های A و B زیر لایه وجود دارد. در نهایت با دسته‌ای از قله‌ها با پهنای و شدت

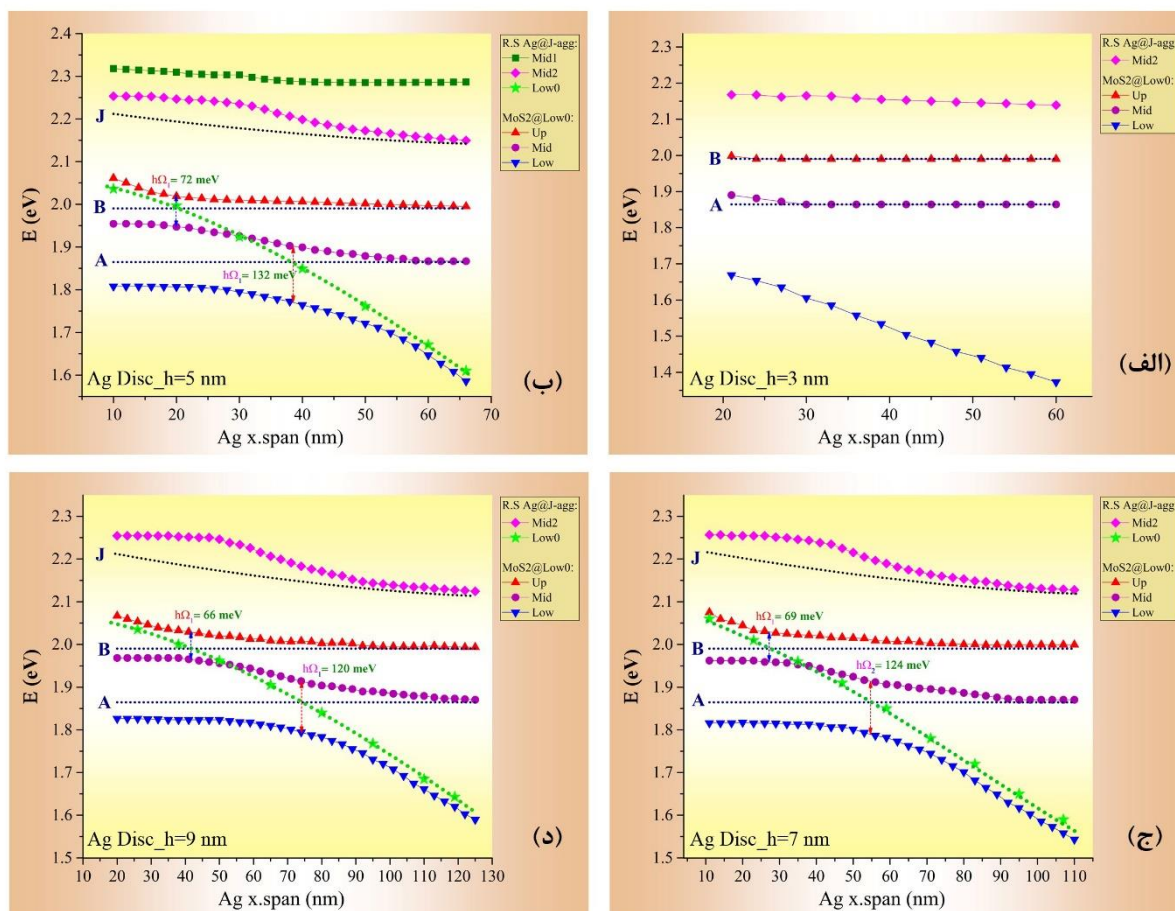
بیشتر مواجه می‌شویم که سهم عمده آن ناشی از حالت پلاسمونی نقره است. با این اوصاف به نظر می‌رسد در اندازه‌های مورد بررسی به وسیله یک قرص نقره با ضخامت ۳ نانومتر جابه‌جایی قابل توجهی برای شاخه‌های اکسایتونی اولیه رخ نداده است. این درحالی است که با توجه به شکل ۱۰ مشخص می‌شود در وضعیتی که ضخامت قرص افزایش می‌یابد می‌توانیم به حالت‌هایی با جابه‌جایی قابل توجه قله‌های اکسایتونی نسبت به حالت اولیه شان دست یابیم که بیانگر ایجاد آمیختگی میان حالت‌های پلاسمونی و اکسایتونی است. مقایسه نمودارهای شکل ۱۰ نشان می‌دهد که با افزایش ضخامت قرص، پهنای قله‌های حالت اکسی‌پلاستونی کاهش می‌یابد؛ که ناشی از کم شدن پهنای قله‌های پلاسمونی نقره است. به ویژه قله‌های نزدیک‌تر به حالت‌های A و B، با وجود ضعف شدت قله‌های A و B، شدت‌هایی قابل مقایسه‌تر با سایر شاخه‌ها پیدا می‌کنند. برای داشتن درک عمیق‌تری از آنچه میان حالت‌های اولیه رخ می‌دهد و تحلیل مسیر جفت‌شدگی میان حالت‌های پلاسمونی و اکسایتونی، در شکل ۱۱ نمودارهای انرژی حالت‌های اولیه و جفت شده بر حسب قطر قرص نقره ترسیم شده‌اند. قابل ذکر است که برای پرهیز از پیچیدگی تصویری، شاخه‌های نزدیک‌تر به اکسایتون‌های فرعی سیانین در نمودارها رسم نشده‌اند. در شکل ۱۱، الف، همان‌طور که در تحلیل طیف خاموشی توضیح داده شد، قله‌های ثانویه ایجاد شده اکسایتونی در اندازه‌های مورد بررسی در محل اولیه خود تکرار می‌شوند. باید به این نکته دقت داشت که برای قرص نقره با ضخامت کمتر، قله‌ها در انرژی‌های پایین‌تر رخ می‌دهد و انتظار می‌رود محل شکل‌گیری شکاف رابی در اندازه‌های کوچک‌تر رخ بدهد و با افزایش ضخامت قرص محل ایجاد رفتار غیر متقاطع به اندازه‌های بزرگتر جابه‌جا شود. از این‌رو، در شکل ۱۱، الف جابه‌جایی قله‌های اکسایتونی در حوالی اندازه‌ای بسیار کوچک‌تر برون‌یابی می‌شود که محدودیت ساختار مورد مطالعه باعث می‌شود چنین محدوده‌ای قابل بررسی نباشد چرا که قطر قرص بالایی (که همواره ۶ نانومتر کوچکتر از قطر نقره است) کمتر از ۵ نانومتر فرض نمی‌شود.



شکل ۱۰. طیف خاموشی نانوساختار اکسی پلاستونی با اندازه قطر متغیر قرص نقره در ۴ حالت برای ضخامت‌های قرص نقره از ۳ تا ۹ نانومتر.

در شکل ۱۱. ب، دو شکافتگی رابی یکی در قطر ۲۰ نانومتری به اندازه ۷۲ میلی الکترون ولت و دیگری در ۳۸/۵ نانومتری به اندازه ۱۳۲ میلی الکترون ولت به وضوح شکل گرفته است. اما این رفتار غیر متقاطع در محل عبور خط انرژی «نقره انتقال قرمز یافته» با حالت اکسایتونی A و B نیست. بنابراین، در این فرآیند یک جفت‌شدگی مستقیم رخ نداده و مسیر جفت‌شدگی کمی پیچیده‌تر از انتظار است. با بررسی دقیق‌تر درمی‌یابیم که شاخه‌هایی که در نمودار با عنوان mid1 و mid2 برچسب گذاری شده‌اند دقیقاً همان شاخه‌های جفت‌شدگی قرص نقره با قرص سیانین در حضور اثر ضریب شکست موثر زیر لایه MoS₂ است، اما شاخه پایینی آن دیده نمی‌شود. چنانچه شاخه پایینی این جفت‌شدگی (که در شکل ۹. ب با فلش نارنجی رنگ روند آن رسم شده) در این نمودار وارد شود دقیقاً خط سبز رنگ که با عنوان Low0 نشان داده شده به‌وجود می‌آید و

مشخص می‌شود محل تقاطع این خط با خطوط انرژی حالت‌های A و B دقیقاً همان جایی است که شکافتگی رابی به‌وجود می‌آید. مجموعاً از آنچه گفته شد نتیجه می‌گیریم در این ساختار طی دو مرحله فرآیند جفت‌شدگی رخ می‌دهد، به‌طوری‌که مستقلاً در مرحله اول قله پلاسمونی با قله‌های اکسایتونی سیانین (البته در حضور ضریب شکست موثر محیط) جفت می‌شوند و شاخه پایینی این جفت‌شدگی، در مرحله بعد، خود با حالت‌های اکسایتونی A و B مربوط به مولیبدن دی‌سولفاید جفت‌شدگی به‌وجود می‌آورد که مبانی نظری آن در بخش‌های قبل داده شد. در شکل ۱۱. ج می‌بینیم که با افزایش ضخامت قرص نقره به ۷ نانومتر شکافتگی رابی به اندازه ۶۹ میلی الکترون ولت در قطر ۲۷ نانومتر و یک شکافتگی رابی به اندازه ۱۲۴ میلی الکترون ولت در قطر ۵۴/۵ نانومتر رخ می‌دهد.



شکل ۱۱. انرژی حالت‌های اولیه و جفت‌شده بر حسب قطر قرص نقره در چهار ضخامت ۳ تا ۹ نانومتر برای قرص نقره.

شاخه در حدود ۳۱۷ میلی‌الکترون ولت بوده و با تغییر ضخامت قرص از ۵ تا ۹ نانومتر این مقدار تغییر چشم‌گیری نخواهد داشت و نسبت جابه‌جایی شاخه‌ها و تغییر شیب آنها به یک اندازه بوده است.

برای بررسی اثر ضخامت قرص سیانین بر کیفیت جفت‌شدگی، در شکل ۱۳ طیف اکسی‌پلاستونی مربوط به ساختارهایی با ضخامت قرص نقره ۵ نانومتر و ضخامت قرص سیانین در دو حالت ۳ و ۹ نانومتر برای قطرهای مختلف قرص نقره ارائه شده است. با دقت در این دو حالت می‌توان دریافت با این‌که تفاوت بسیار اندکی میان دو طیف به‌وجود آمده است، اما در حالتی که قرص سیانین ضخامت کمتری داشته باشد علاوه بر این‌که قله‌های جفت‌شده پهنای نسبتاً کمتری خواهند داشت، قله‌های نزدیک به حالت اولیه A در حوالی ۶۶۵ نانومتر نیز نسبت به حالت اولیه خود جابه‌جایی بیشتری داشته و جفت‌شدگی آن بیشتر است.

همان‌طور که انتظار می‌رفت با افزایش ضخامت قرص، قله‌های پلاسمونی جابه‌جایی آبی دارند و محل تقاطع آنها نیز با قله‌های اکسیپلستونی در اندازه‌های بزرگتر واقع می‌شود. همچنین در شکل ۱۱، د، قرص نقره با ضخامت ۹ نانومتر بررسی شده است که شکافتگی رابی در قطر ۴۱/۵ نانومتر به اندازه ۶۶ میلی‌الکترون ولت و در قطر ۷۴ نانومتر، ۱۲۰ میلی‌الکترون ولت اندازه‌گیری شد. بنابراین، مشخص می‌شود که اگرچه افزایش ضخامت قرص نقره منجر به قله‌های اکسی‌پلاستونی با پهنای کمتر شد اما رفتار غیر متقاطع مربوط به بسامد واکوکی صفر برای حالت‌ها، در اندازه‌های بزرگتر رخ داده و مقدار شکافتگی رابی در این روند کاهش یافته است.

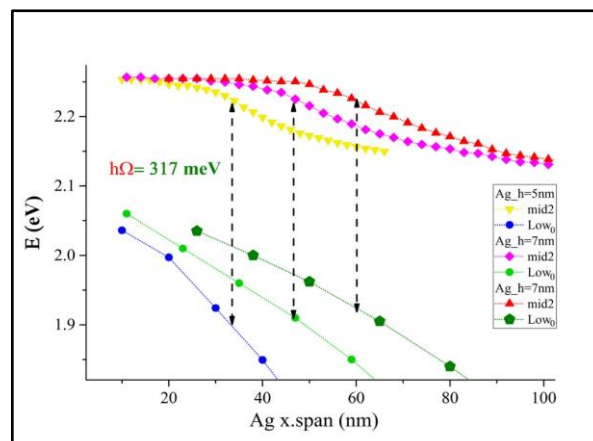
همچنین این بررسی در شکل ۱۲ برای شاخه Low0 و شاخه میانی mid2 (که سهم قابل توجهی از آن مربوط به حالت اولیه باند ز اکسیپلستون سیانین است) انجام پذیرفت. همان‌طور که از شکل مشخص می‌شود با تقریب خوبی شکافتگی میان این دو

۵. نتیجه‌گیری

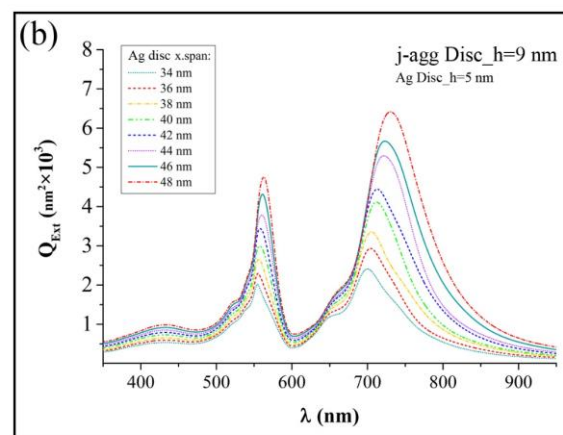
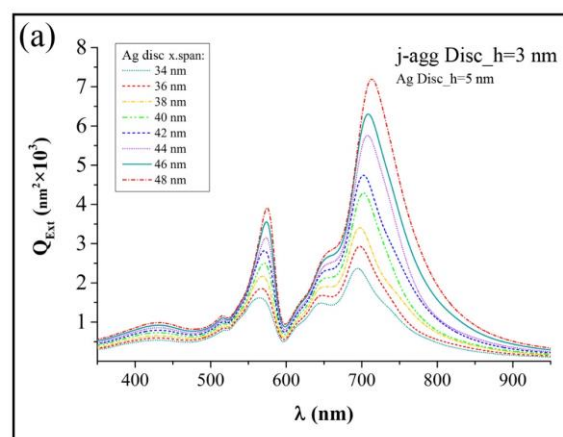
در این پژوهش، رفتار طیفی و سازوکار جفت‌شدگی اکسایتون-پلاسمون-اکسایتون در ساختاری متشکل از یک نانوذره قرصی شکل نقره و یک لایه قرصی سیانین با انباشت J بر روی بستر تک‌لایه‌ای MoS_2 با دو گذار فعال اکسایتونی A و B، به‌طور جامع بررسی گردید. مشخص شد که با افزایش قطر قرص نقره (در ضخامت ۵ نانومتر)، قله پلاسمونی در اثر تاخیر فازی و کاهش نسبت سطح به حجم به‌طور منظم به سمت طول موج‌های بلندتر (جابه‌جایی قرمز) حرکت کرده و به تدریج باریک‌تر و شدیدتر می‌شود. سپس با افزایش ضخامت قرص نقره (۳ تا ۹ نانومتر)، تشدید پلاسمونی برخلاف افزایش قطر، به سمت طول موج‌های کوتاه‌تر (جابه‌جایی آبی) سوق یافته و پهنای قله‌ها همچنان کاهش می‌یابد. بررسی ترکیبی این دو پارامتر نشان داد که هرچه ضخامت قرص بیشتر باشد، روند شیب تغییرات انرژی بر حسب قطر، خطی‌تر می‌شود.

جفت‌شدگی مستقیم میان پلاسمون قرص نقره و دو گذار اکسایتونی A و B در تک‌لایه MoS_2 نشان داد که زیرلایه MoS_2 به‌تنهایی می‌تواند مدهای پلاسمونی را به حالت‌های پلاریتونی جفت شده تبدیل کند و امکان مناسبی برای جفت‌شدگی همزمان نقره با این لایه و با انباشت J فراهم آورد. چنان‌که با افزایش ضخامت قرص نقره انرژی شکافتگی رابی کاهش یافت. همچنین تأثیر بستر MoS_2 با ضریب شکست بالا نیز به‌صورت جابه‌جایی قرمز و افزایش پهنای قله‌ها در مقایسه با حالت خلاء در مطالعات کاملاً آشکار شد؛ به‌طوری‌که تحلیل دقیق بخش حقیقی و موهومی تابع دی‌الکتریک زیرلایه برای توصیف صحیح سامانه لازم است.

با افزودن سیانین با انباشت J به‌عنوان قرص بالایی روی قرص نقره، مشاهده شد که در مرحله اول، پلاسمون نقره با قله اصلی J و دو قله فرعی آن جفت می‌شود و سه شاخه جفت شده مستقل پدید می‌آورد. شاخه پایین انرژی این جفت‌شدگی اولیه، در مرحله دوم، خود با اکسایتون‌های A و B زیرلایه MoS_2 برهم‌کنش یافته و دو شکافتگی رابی مجزا خلق می‌کند. این جفت‌شدگی دو مرحله‌ای با مقایسه طیف هامیلتونی کلی 6×6 و



شکل ۱۲. شکافتگی رابی بین حالت میانی Mid2 و شاخه پایینی Low0 در جفت‌شدگی مرحله نخست میان اکسایتون‌های سیانین و پلاسمون قرص نقره.



شکل ۱۳. سطح مقطع خاموشی برای طیف اکسی‌پلاستونی با ضخامت قرص نقره ۵ نانومتر و ضخامت ۳ و ۹ نانومتر برای قرص سیانین.

همچنین قله‌های حوالی حالت‌های اولیه اکسایتون فرعی سیانین نیز در این حالت وضوح بیشتری پیدا کرده و مجموعاً تمایز قله‌ها افزایش یافته است.

روش ترتیبی (دو هامیلتونی مجزا)، به‌وضوح قابل‌پیگیری و اثبات است.

تأثیر ضخامت قرص نقره به این ترتیب بود که با قرص‌هایی با ضخامت بیشتر پهنای قله‌های جفت شده کم شد ولی مقدار انرژی شکافتگی رابی کاهش یافت. افزون بر این، تغییرات ضخامت لایه سیانین نشان داد که در لایه‌های نازک‌تر، جفت‌شدگی قوی‌تر و شکافتگی بزرگ‌تر حاصل می‌شود.

این نتایج، فراتر از فهم بنیادی جفت‌شدگی نور-ماده در مقیاس نانو، نشان می‌دهند که می‌توان با تنظیم هندسه و ترکیب مواد،

۶. مراجع

مسیرهای همدوس انتقال انرژی میان حالت‌های مختلف اپتیکی را به‌وجود آورد و در نتیجه سامانه‌هایی با پاسخ طیفی قابل تنظیم برای کاربردهای پیشرفته در حسگرها، سوئیچ‌های نوری کوانتومی و مدارهای نانوفوتونیکی طراحی نمود. مطالعات آینده می‌تواند به بررسی روش‌های کنترل مسیرهای جفت‌شدگی بپردازد تا گام‌های موثری در راه توسعه وسایل کوانتومی و اپتوالکترونیکی با بازده و کارایی بی‌سابقه برداشته شود.

1. J Guan, et al., Chem. Rev. **122**, 19 (2022) 15177.
2. J Sun, et al., Nanoscale **13**, 8 (2021) 4408.
3. E Cao, et al., Nanophotonics **7**, 1 (2018) 145.
4. Y Chen and M Sun, Nanoscale **15**, 28 (2023) 11834.
5. F Stete, M Bargheer, and W Koopman, Nanoscale **15**, 40 (2023) 16307.
6. P Jiang, et al., Opt. Express **27**, 12 (2019) 16613.
7. K Liang, et al., Nanophotonics **12**, 17 (2023) 3471.
8. J Ye, et al., China Phys. Mech. Astron. **66**, 4 (2023) 244212.
9. L Greten, et al., ACS Photonics **11**, 4 (2024) 1396.
10. H Pezeshki, et al., Phys. Rev. Appl. **19**, 5 (2023) 054036.
11. Z He, et al., Nanomaterials **12**, 8 (2022) 1242.
12. S A Maier, "Plasmonics: Fundamentals and Applications", New York: Springer, (2007).
13. S Marhaba, "in Effect of Size, Shape and Environment on the Optical Response of Metallic Nanoparticles", IntechOpen (2018).
14. E D Palik (Ed.), "Handbook of Optical Constants of Solids III", Academic Press, (1998).
15. K L Kelly, et al., J. Phys. Chem. B **107**, 3 (2003) 668.
16. K Takatori, et al., Opt. Lett. **42**, 19 (2017) 3876.
17. E Yaghooti, F Babaei, and R Liu, Nanoscale **17**, 14 (2025) 8933.
18. S Balci, et al., Phys. Rev. B **86**, 23 (2012) 235402.
19. M D. Fraser, S Höfling, and Y Yamamoto, Nat. Mater. **15**, 10 (2016) 1049.
20. V Rutckaia and J Schilling, Nat. Photonics **14**, 1 (2020) 4.
21. X Zhang and J Yang, Front. Phys. **7** (2019) 190.
22. R Liu, et al., Nat. Commun. **15**, 1 (2024) 4103.
23. G Zengin, et al, Phys. Rev. Lett. **114**, 15 (2015) 157401.
24. P Törmä and W L Barnes, Rep. Prog. Phys. **78**, 1 (2014) 013901.
25. N Zorn Morales, et al., phys. status solidi (RRL) **19**, 6 (2025) 2400417.
26. Q You, et al., Opt. Express **32**, 6 (2024) 9105.
27. H Yang, et al., J. Phys. Chem. C **121**, 45 (2017) 25455.
28. W Liu, et al., Nano Lett. **16**, 2 (2016) 1262.
29. K F Mak, et al., Phys. Rev. Lett. **105** (2010) 136805.
30. C Hsu, et al., Adv. Opt. Mater. **7**, 13 (2019) 1900239.
31. Y Li, et al., Phys. Rev. B **90**, 20 (2014) 205422.
32. L Li, et al., Nat. Commun. **15**, 1 (2024) 1825.
33. S Ding, et al., ACS Nano **18**, 1 (2023) 1195.
34. M Hertzog, et al., Chem. Soc. Rev. **48**, 3 (2019) 937.
35. Y M Lee, S E Kim, and J E Park, Nano Convergence **10**, 1 (2023) 34.
36. E Yaghooti, F Babaei, Iranian Journal of Physics Research, **25**, 1 (2025) 109.