



جفت‌شدگی ترتیبی در نانوذرات سه مولفه‌ای پلاسمون-اکسایتون - پلاسمون

عابد آل‌محمود اردهائی*، عمادالدین یاقوتی و فریدون بابائی

گروه فیزیک، دانشکده علوم پایه، دانشگاه قم، قم

پست الکترونیکی: a.alemahmud@stu.qom.ac.ir

(دریافت مقاله: ۱۴۰۴/۰۴/۲۱؛ دریافت نسخه نهایی: ۱۴۰۴/۰۶/۰۸)

چکیده:

در این پژوهش، با بهره‌گیری از روش شبیه‌سازی تفاضل محدود در حوزه زمان (FDTD)، پاسخ اپتیکی ساختارهای آمیخته پلاسمون-اکسایتون-پلاسمون (PEP) شامل نانوذرات فلزی قرصی از جنس نقره و طلا، به‌همراه اکسایتون‌های مولکولی از جنس رنگدانه‌های سیانین با انباشت J مورد بررسی قرار گرفت. در گام نخست، طیف‌های خاموشی اجزای منفرد فلزی و مولکول‌های رنگدانه‌ای به‌طور جداگانه تحلیل شد تا ویژگی‌های تشدید ذاتی هر یک از اجزا شناسایی گردد. در ادامه، تاثیر تغییر پارامترهای ساختاری بر جفت‌شدگی بین آن‌ها مورد ارزیابی قرار گرفت. طیف‌های حاصل، سه شاخه آمیخته متمایز شامل شاخه پایینی (L)، میانی (M) و بالایی (U) را نمایان ساخت که نشان‌دهنده برهم‌کنش مولفه‌های اولیه پلاسمونی و اکسایتونی با یکدیگر است. با دنبال کردن تغییرات بسامد واکوکی، مسیرهای جفت‌شدگی بین تشدیدهای پلاسمونی و اکسایتونی مشخص گردید. نتایج به‌وضوح نقش کلیدی اندازه نانوذرات و تغییرات واکوکی در شکافتگی رابی و رفتار غیرمتقاطع حالت‌های آمیخته را نشان می‌دهد. این مطالعه چارچوب جامعی برای مهندسی طیفی ساختارهای آمیخته PEP ارائه می‌دهد و پتانسیل بالای آن‌ها را در توسعه دستگاه‌های نانوفوتونیک پیشرفته، حسگرهای زیستی مبتنی بر برهم‌کنش‌های PEP را برجسته می‌سازد.

واژه‌های کلیدی: پلاسمون، اکسایتون، پلکسیمون، جفت‌شدگی ترتیبی، شکافتگی رابی

۱. مقدمه

اکسایتون منجر می‌شود که دارای خواص نوری و الکترونی منحصر به فردی هستند [۴ و ۵]. این پلاریتون‌ها به دلیل قابلیت برهم‌کنش قوی و انتقال انرژی در مقیاس‌های زیر طول موج، امکان تقویت و کنترل دقیق نور را در ابعاد نانومتری فراهم می‌کنند. این ویژگی‌ها، ساختارهای آمیخته پلاسمون-اکسایتون را به بستری کلیدی برای توسعه فناوری‌هایی همچون لیزرهای پلاسمونی با آستانه پایین، تقویت‌کننده‌های نوری غیرخطی، سلول‌های خورشیدی با کارایی بهبود یافته و حسگرهای نوری فوق‌حساس تبدیل کرده است [۶-۸].

پلاسمون‌های سطحی جایگزیده، ناشی از نوسانات جمعی چگالی الکترون‌های آزاد در سطح نانوذرات فلزی تحت تابش

در سال‌های اخیر، پیشرفت‌های چشمگیر در فناوری نانو، زمینه را برای توسعه ساختارهای آمیخته پلاسمون-اکسایتون فراهم و توجه پژوهشگران حوزه اپتیک کوانتومی را به خود جلب کرده است. این ساختارها از ترکیب نانوذرات فلزی که قادر به برانگیختن حالت‌های پلاسمون سطحی جایگزیده هستند، با مواد نیمه‌رسانای حاوی جفت‌های مقید الکترون-حفره (اکسایتون‌ها)، تشکیل می‌شوند [۱-۳]. برهم‌کنش هم‌دوس بین این حالت‌های پلاسمونی و اکسایتونی، به شکل‌گیری حالت‌های آمیخته جدیدی به نام پلاریتون‌های پلاسمون-

پلاسمونی و اکسایتونی است. در این گونه ساختارها، امکان جفت‌شدگی چندگانه، چه به صورت مستقیم و چه به صورت ترتیبی، وجود دارد که می‌تواند پدیده‌هایی مانند افزایش جذب در نواحی طیفی خاص و حتی تسهیل برهم‌کنش نور و ماده را به دنبال داشته باشد [۱۶ و ۱۷].

در این مطالعه، تمرکز بر روی یک ساختار آمیخته سه‌گانه است که در آن دو نوع نانوذره فلزی، یعنی طلا و نقره، همراه با محیط اکسایتونی متشکل از مولکول‌های آلی سیانین با انباشت J، به کار گرفته شده‌اند. نانوذرات طلا و نقره به دلیل تفاوت‌های ذاتی در پاسخ‌های پلاسمونی خود، امکان ایجاد دو حالت پلاسمونی متمایز را فراهم می‌کنند؛ نانوذرات طلا تشدید را در ناحیه مرئی با انرژی بالاتر نسبت به نانوذرات نقره نشان می‌دهند، در حالی که برانگیختگی پلاسمونی نقره با پهنای باند باریک‌تر در طول موج کوتاه‌تر نسبت به طلا به وجود می‌آید. ترکیب این دو حالت پلاسمونی با حالت اکسایتونی، شرایط لازم برای تشکیل آمیختگی سه‌گانه پلاسمون-اکسایتون-پلاسمون (پلکسیمون) را فراهم می‌آورد. این حالت آمیخته دارای پتانسیل بسیار بالایی برای کنترل دینامیکی نور در مقیاس نانو است و می‌تواند زمینه‌ساز کاربردهای پیشرفته در نانوفوتونیک باشد [۱۸].

هدف اصلی این پژوهش، بررسی دقیق شرایط فیزیکی و شناسایی پارامترهای کلیدی لازم برای تحقق آمیختگی چندگانه و ترتیبی در نانوذره‌های پلکسیمونی است. علاوه بر این، تحلیل خواص اپتیکی و طیفی ساختار آمیخته ارائه شده و بررسی تأثیر پارامترهایی از قبیل فاصله بین اجزاء، اندازه نانوذرات و بسامد واکوکی بین حالت‌ها بر رفتار کلی سامانه نیز در دستور کار قرار دارد. با بهره‌گیری از الگوسازی نظری و انجام محاسبات عددی گسترده، پویایی این ساختار آمیخته به دقت مورد ارزیابی قرار گرفت تا فهمی عمیق‌تر نسبت به سازوکار ظهور حالت‌های آمیخته ترتیبی در سامانه‌های نانو ساختاری حاصل شود.

ساختارهایی که از چندین حالت اپتیکی برهم‌کنشی بهره‌مند هستند، بستر مناسبی برای مهندسی دقیق پاسخ‌های نوری در مقیاس زیرطول موج فراهم می‌آورند. حضور این حالت‌های

میدان الکترومغناطیسی هستند. این نوسانات موجب ایجاد میدان الکتریکی بسیار متمرکز در نزدیکی سطح نانوذره می‌شود، به طوری که شدت این میدان می‌تواند چندین برابر میدان تابشی اولیه باشد. این ویژگی امکان تقویت قابل توجه برهم‌کنش‌های نور-ماده را فراهم کرده و زمینه را برای ورود به رژیم جفت‌شدگی قوی فراهم می‌کند [۹-۱۱]. جایی که حالت‌های آمیخته جدیدی از برهم‌کنش میان پلاسمون‌ها و اکسایتون‌ها شکل می‌گیرند. از سوی دیگر، اکسایتون‌ها که شبه‌ذرات ناشی از جفت‌شدگی الکترون-حفره هستند، نقش مهمی در فرایندهای جذب و گسیل نور در بسیاری از مواد، از جمله نیمه‌رساناها، بلورهای آلی، و به‌ویژه مولکول‌های آلی همچون رنگدانه‌های سیانین در قالب انباشت J ایفا می‌کنند. این مولکول‌ها به دلیل پهنای نوار جذب باریک و شدت جذب بالای خود، گزینه‌ای آرمانی برای ساخت سامانه‌های آمیخته با قابلیت جفت‌شدگی قوی به شمار می‌آیند [۱۲].

برهم‌کنش میان یک نانوذره فلزی و مولکول‌های سیانین با انباشت J زمانی وارد محدوده آمیختگی قوی می‌شود که نرخ جفت‌شدگی پلاسمون-اکسایتون از نرخ‌های میرایی مربوط به هر دو شاخه پلاسمونی و اکسایتونی (γ_p, γ_{ex}) فراتر رود [۱۳]. در چنین شرایطی پاسخ طیفی، دیگر به صورت جمع جبری طیف‌های مستقل هر نانوذره ظاهر نمی‌شود، بلکه دو قله جدید با جدایی بسامدی مشخص، که به عنوان شکافتگی رابی^۱ شناخته می‌شوند، پدیدار می‌گردد. این پدیده نشان‌دهنده تشکیل حالت‌های آمیخته جدیدی به نام پلکسیمون‌ها است. حالت‌های آمیخته پلکسیمونی دارای ویژگی‌هایی مانند نرخ اتلاف انرژی کمتر و توانایی کنترل دقیق پاسخ طیفی سامانه هستند. تحقیقات گسترده نشان داده است که این خصوصیات می‌توانند به طور قابل توجهی بازده لیزرهای نانو مقیاس، حساسیت حسگرهای نوری و عملکرد سامانه‌های تبدیل انرژی خورشیدی را بهبود ببخشند [۱۴ و ۱۵].

علاوه بر جفت‌شدگی دوتایی معمول که بین یک پلاسمون و یک اکسایتون اتفاق می‌افتد، اخیراً توجه زیادی به ساختارهای آمیخته پیچیده‌تر معطوف شده است که شامل چندین حالت

۱. Rabi splitting

این حالت‌ها می‌تواند در سه رژیم متفاوت ضعیف، میانی و قوی اتفاق بیفتد [۲۰]. برای یک سامانه ساده شامل تنها یک حالت پلاسمونی و یک حالت اکسایتونی، شدت جفت‌شدگی g را می‌توان از طریق انرژی حالت‌های آمیخته سامانه و با لحاظ کردن بسامد واکوکی $\delta = \omega_p - \omega_{ex}$ میان دو حالت، مطابق با رابطه (۲) تعیین کرد [۲۱]:

$$g = \sqrt{\left(\frac{\delta}{2}\right)^2 - \left(\frac{\omega_+ - \omega_-}{2}\right)^2} \quad (2)$$

که در آن ω_+ بسامد حالت جفت شده با انرژی بالاتر و ω_- بسامد حالت جفت شده با انرژی پایین‌تر است. در سامانه‌های سه حالتی، هامیلتونی سامانه را می‌توان به صورت یک ماتریس 3×3 در نظر گرفت که عناصر غیرقطری آن، ضرایب جفت‌شدگی میان هر جفت از حالت‌ها (پلاسمون-پلاسمون و پلاسمون-اکسایتون) را شامل می‌شود [۲۲]. انرژی‌های آمیخته حاصل از این برهم‌کنش‌ها، با حل معادله مشخصه این ماتریس به دست می‌آیند و به صورت سه ریشه مجزا ظاهر می‌شوند. تعیین دقیق ضرایب جفت‌شدگی g_{ij} مستلزم قطری‌سازی کامل ماتریس هامیلتونی و تحلیل فاصله‌های انرژی میان این حالت‌هاست. در این تحلیل، مفهوم واکوکی به صورت تعمیم‌یافته وارد می‌شود، مانند واکوکی بین دو حالت پلاسمونی یا بین حالت ترکیبی پلاسمون-پلاسمون و حالت اکسایتونی. در این شرایط پیچیده، استخراج دقیق مقادیر جفت‌شدگی اغلب نیازمند بررسی دقیق طیف‌های خاموشی یا استفاده از الگوسازی‌های عددی پیشرفته است. با این حال، تعریف اصلی قدرت جفت‌شدگی همچنان بر پایه فاصله انرژی بین حالت‌های آمیخته و مقادیر انرژی حالت‌های منفرد در غیاب اتلاف انرژی باقی می‌ماند. برای شفاف‌سازی ساختار انرژی و چگونگی برهم‌کنش میان حالت‌ها، می‌توان هامیلتونی معادله (۱) را به صورت یک ماتریس 3×3 بازنویسی کرد، که شکل دقیق آن در معادله (۳) آمده است:

$$H = \begin{bmatrix} \hbar\omega_p^{(1)} & \hbar g_{12} & \hbar g_{1ex} \\ \hbar g_{21} & \hbar\omega_p^{(2)} & \hbar g_{2ex} \\ \hbar g_{ex1} & \hbar g_{ex2} & \hbar\omega_{ex} \end{bmatrix} \quad (3)$$

در ماتریس هامیلتونی بالا، درایه‌های روی قطر اصلی نمایانگر انرژی ذاتی هر حالت منفرد (پلاسمونی یا اکسایتونی) است.

اپتیکی، امکان بروز پدیده‌هایی همچون شکافتگی رابی و کنترل طیفی برهم‌کنش نور-ماده را فراهم می‌سازد. این ویژگی‌ها به طور مستقیم در افزایش حساسیت، تنظیم‌پذیری طیفی و تقویت میدان‌های نوری موضعی نقش دارند. از این رو، چنین ساختارهایی به عنوان ابزاری کارآمد برای توسعه نسل جدید تجهیزات نانوفوتونیک، نظیر نانولیزرهای کم‌آستانه، حسگرهای نوری فوق‌حساس و سامانه‌های ذخیره‌سازی نور مطرح هستند. افزون بر این، مهندسی حالت‌های اپتیکی در این سامانه‌ها می‌تواند مسیر جدیدی برای طراحی مواد فراماده با پاسخ‌های غیرخطی و کوانتومی کنترل‌پذیر، به وجود آورد.

۲. مبانی نظری

برای بررسی پدیده جفت‌شدگی بین پلاسمون‌ها و اکسایتون‌ها در سامانه‌های آمیخته متشکل از نانوذرات فلزی و مولکول‌های رنگ‌دانه سیانین، گام نخست، تدوین یک هامیلتونی مناسب برای توصیف برهم‌کنش بین این زیرسامانه‌ها است. در چنین ساختاری، دو حالت پلاسمونی مربوط به دو نانوذره فلزی و یک حالت اکسایتونی ناشی از تجمع منظم مولکول‌های سیانین با انباشت J حضور دارند. هر یک از این حالت‌ها را می‌توان با نوسانگر هماهنگ الگوسازی کرد و تعامل بین آن‌ها را از طریق جملات برهم‌کنشی در هامیلتونی وارد کرد. شکل کلی هامیلتونی چنین سامانه‌ای، که شامل دو نانوذره فلزی و یک نانوذره اکسایتونی است، به صورت معادله (۱) نوشته می‌شود [۱۹]:

$$\hat{H} = \hbar\omega_p^{(1)}\hat{a}_1^\dagger\hat{a}_1 + \hbar\omega_p^{(2)}\hat{a}_2^\dagger\hat{a}_2 + \hbar\omega_{ex}\hat{b}^\dagger\hat{b} + \hbar g_{12}(\hat{a}_1^\dagger\hat{a}_2 + \hat{a}_2^\dagger\hat{a}_1) + \hbar g_{1ex}(\hat{a}_1^\dagger\hat{b} + \hat{b}^\dagger\hat{a}_1) + \hbar g_{2ex}(\hat{a}_2^\dagger\hat{b} + \hat{b}^\dagger\hat{a}_2) \quad (1)$$

در این سامانه، $\omega_p^{(1)}$ و $\omega_p^{(2)}$ به ترتیب بسامدهای حالت‌های پلاسمونی و ω_{ex} بسامد حالت اکسایتونی است. ضرایب جفت‌شدگی g_{12} و g_{iex} نیز نشان‌دهنده شدت برهم‌کنش بین حالت‌های پلاسمون-پلاسمون و پلاسمون-اکسایتون هستند. مقدار این ضرایب مستقیماً تحت تأثیر میزان هم‌پوشانی میدان‌های الکترومغناطیسی، چیدمان هندسی نانوذرات و ویژگی‌های دی‌الکتریک محیط قرار دارد. فرایند آمیختگی بین

انرژی را ممکن می‌سازد [۲۶ و ۲۷].

یکی دیگر از جنبه‌های حیاتی در الگوسازی سامانه‌های آمیخته، در نظر گرفتن اثر میرایی^۱ و ضریب کیفیت^۲ است. میرایی به صورت یک ضریب γ وارد عناصر قطری ماتریس هامیلتونی می‌شود و بیانگر نرخ اتلاف انرژی در هر حالت نوسانی است. به دلیل وجود این اتلاف، هامیلتونی سامانه به صورت غیرهرمیتی تعریف می‌شود که امکان تحلیل پهنای خطوط طیفی، نرخ واپاشی حالت‌ها، و پایداری حالت‌های آمیخته را فراهم می‌سازد. در این شرایط، ویژه مقادیر هامیلتونی به صورت مختلط ظاهر می‌شوند؛ به طوری که بخش حقیقی آن‌ها انرژی حالت‌ها و بخش موهومی، معرف نرخ میرایی یا پهنای خطوط طیفی مرتبط با هر حالت است [۲۸].

ضریب کیفیت $Q = \frac{\omega}{\gamma}$ (بسامد مرکزی) معیاری کلیدی برای سنجش ماندگاری و وضوح حالت‌های آمیخته به شمار می‌رود. سامانه‌هایی با مقادیر بالای Q ، امکان مشاهده دقیق تر شکافتگی رابی و تمایز بین حالت‌های نزدیک به هم را فراهم می‌کنند. در واقع، مقدار بالای Q منجر به شکافتگی طیفی بارزتر و جفت‌شدگی قوی‌تر بین حالت‌ها می‌شود. تحلیل دقیق پارامترهای میرایی و Q ، بینشی عمیق نسبت به پویایی و کیفیت آمیختگی فراهم می‌آورد و برای بهینه‌سازی عملکرد نانو ساختارهای پلکسیمونی در کاربردهای اپتوالکترونیکی، اهمیت حیاتی دارد [۲۹ و ۳۰].

از سوی دیگر، نقش هندسه و ابعاد نانو ذرات فلزی در شکل‌گیری و ویژگی‌های پلاسمون‌های سطحی موضعی، اهمیت بسزایی دارد. هندسه نانو ذرات تعیین‌کننده بسامد تشدید پلاسمونی، شدت میدان الکترومغناطیسی، و توزیع فضایی حالت‌هاست؛ عواملی که به طور مستقیم در ساختار ماتریس هامیلتونی منعکس می‌شوند. تغییرات هندسی همچون اندازه، شکل (کروی، بیضوی، منشوری) و آرایش فضایی نانو ذرات، منجر به تغییر در انرژی‌های پلاسمون شده و در نتیجه، عناصر قطری و غیرقطری ماتریس هامیلتونی باید متناسب با این تغییرات اصلاح شوند. به عنوان مثال، کاهش اندازه نانو ذره

عناصر غیرقطری، بیانگر انرژی جفت‌شدگی بین جفت‌های مختلف از حالت‌ها هستند. برای مثال، g_{ij} انرژی جفت‌شدگی میان دو حالت پلاسمونی را نشان می‌دهد که می‌تواند عمدتاً ناشی از برهم‌کنش دوقطبی-دوقطبی آن‌ها باشد. همچنین، ضرایب g_{ex} و g_{xi} نمایانگر انرژی‌های جفت‌شدگی بین هر یک از حالت‌های پلاسمونی و حالت اکسایتونی هستند. این ضرایب جفت‌شدگی، در شرایط تجربی قابل تنظیم‌اند و می‌توان آن‌ها را از طریق تغییر فاصله بین نانو ذرات، نوع و ضخامت پوشش مولکولی و محیط دی‌الکتریک اطراف کنترل کرد [۲۳]. برای به دست آوردن انرژی‌های آمیخته و تحلیل دقیق ساختار حالت‌های ترکیبی، بایستی معادله مشخصه ماتریس هامیلتونی حل شود که منجر به سه مقدار ویژه خواهد شد.

$$\det(H - \hbar\omega I) = 0 \quad (4)$$

در شرایط جفت‌شدگی قوی، فاصله بین این ویژه مقادیر مستقیماً به صورت شکافتگی رابی در طیف‌های نوری ظاهر می‌شود. این شکافتگی معمولاً به صورت دو قله مجزا در طیف خاموشی یا جذبی دیده می‌شود و نشانه شکل‌گیری حالت‌های آمیخته جدید با ماهیت آمیخته از ویژگی‌های پلاسمونی و اکسایتونی است [۲۴].

یکی دیگر از مفاهیم کلیدی در این تحلیل، بسامد واکوکی $\delta = (\omega_{pl} - \omega_{ex})$ است که به صورت اختلاف بسامد میان حالت‌های غیرجفت‌شده تعریف می‌شود و به طور مستقیم بر شدت جفت‌شدگی و ویژگی‌های طیفی تأثیر می‌گذارد. کاهش مقدار واکوکی منجر به افزایش هم‌پوشانی میدان‌های حالت‌ها و در نتیجه، افزایش شکافتگی رابی و پایداری بالاتر حالت‌های ترکیبی می‌شود [۲۵]. افزون بر این، با تحلیل ویژه بردارهای مربوط به ماتریس هامیلتونی، می‌توان مؤلفه‌های تشکیل‌دهنده هر حالت آمیخته را تعیین کرد و سهم نسبی هر حالت منفرد (پلاسمونی یا اکسایتونی) را در آن به دست آورد. این تحلیل، ابزاری مهم در طراحی نانو ساختارهای اپتیکی است، چرا که امکان مهندسی دقیق نسبت‌های پلاسمون-اکسایتون را فراهم کرده و در نتیجه، تنظیم هدفمند خواص جذب، گسیل و انتقال

۱. Damping

۲. Quality factor

آمیخته با خواص نوری قابل تنظیم می‌گردد. در ادامه، ابتدا هندسه نمونه‌های مورد مطالعه توصیف شده و سپس نتایج حاصل از شبیه‌سازی‌ها ارائه خواهد شد.

نانوذرات مورد بررسی در این مطالعه، به دو گونه متمایز با آرایش متفاوت مواد تقسیم می‌شوند. ساختار نوع اول متشکل از یک قرص زیرین از جنس فلز نقره (Ag) با ضخامت ثابت ۵ نانومتر و قطر متغیر است که به‌عنوان بستری برای تحریک پلاسمون‌های سطحی عمل می‌کند. بر روی این قرص، یک قرص هسته-پوسته با ضخامت ۵ نانومتر قرار گرفته که شامل یک هسته مرکزی از جنس فلز طلا (Au) و پوسته‌ای از مولکول‌های رنگدانه سیانین با انباشت J است. در این ساختار همواره قطر قرص زیرین ۶ نانومتر بیشتر از قطر قرص هسته-پوسته بالایی در نظر گرفته می‌شود تا لبه آن سه نانومتر از لبه قرص بالایی فاصله داشته باشد. این آرایش امکان برهم‌کنش پلاسمون‌های نقره و طلا با اکسایتون مولکول‌های سیانین را فراهم می‌سازد. در ساختار دوم، جایگاه مواد فلزی وارون شده است؛ به‌طوری که قرص زیرین از جنس طلا (Au) و هسته مرکزی قرص بالایی از جنس نقره (Ag) است. پوسته قرص بالایی در این ساختار نیز از سیانین با همان ابعاد نمونه اول طراحی شده است. این طراحی مقایسه نظام‌مند تأثیر جایگشت مواد بر روی شدت جفت‌شدگی و موقعیت تشدیدهای آمیخته را ممکن می‌سازد. در شبیه‌سازی این پیکربندی، بردار انتشار موج k در راستای محور z و میدان الکتریکی E در راستای محور x انتخاب شده‌اند تا امکان برهم‌کنش همزمان پلاسمون‌های سطحی در فلزات با اکسایتون‌های سیانین تحت تابش میدان الکترومغناطیسی فراهم شود (شکل ۱).

در شبیه‌سازی‌های انجام گرفته به روش FDTD، ضمن اعمال شرایط مرزی جاذب PML، سطح مقطع خاموشی برای نانوذرات قرص پلکسیمونی واقع در محیط خلاء استخراج شد. پارامترهای نوری نقره از داده‌های اپتیکی موجود در کتابخانه پالیک (Palik) و برای طلا از داده‌های جانسون و کریستی (Johnson & Christy) استخراج شده‌اند.

معمولاً منجر به افزایش بسامد پلاسمونی و ایجاد جابه‌جایی آبی می‌شود، در حالی که تغییر شکل به بیضوی یا کشیده‌تر، منجر به جابه‌جایی قرمز یا کاهش انرژی پلاسمون می‌گردد [۳۱-۳۵].

این پارامترهای هندسی نه تنها بر موقعیت انرژی حالت‌های پلاسمونی تأثیر می‌گذارند، بلکه شدت جفت‌شدگی بین پلاسمون-پلاسمون و پلاسمون-اکسایتون را نیز تغییر می‌دهند. با بهره‌گیری از شبیه‌سازی‌های عددی مانند روش تفاضل محدود در حوزه زمان (FDTD)، می‌توان توزیع میدان‌های الکترومغناطیسی و پارامترهای هندسی وابسته را به‌دست آورد و آن‌ها را با عناصر ماتریس هامیلتونی تطبیق داد تا تحلیل دقیقی از رفتار سامانه آمیخته حاصل شود. این رویکرد به ما امکان می‌دهد تا اثر هندسه را بر توزیع انرژی و ترکیب حالت‌های آمیخته به‌صورت کمی بررسی کنیم.

در نهایت، از طریق مقایسه بین طیف‌های منفرد (تک حالتی) و آمیخته، می‌توان برای هر اندازه مشخص از نانوذرات، مقادیر تقریبی عناصر ماتریس هامیلتونی را استخراج کرد. همچنین با تجزیه حالت‌های آمیخته بر اساس ویژه بردارها، می‌توان سهم نسبی هر حالت (پلاسمونی یا اکسایتونی) را در تشکیل این حالت‌ها تعیین نمود. این نوع تحلیل نقش مهمی در طراحی سامانه‌های نوری، تقویت‌کننده‌های نانوپلاسمونی و حافظه‌های نوری ایفا می‌کند، چرا که امکان مهندسی دقیق برهم‌کنش‌ها و بهینه‌سازی خواص نوری فراهم می‌شود [۳۶-۳۸].

۳. نتایج و بحث

در این پژوهش، به بررسی پاسخ نوری نانوذرات منفرد و آمیخته متشکل از فلزات نقره، طلا و مولکول‌های سیانین با انباشت J با استفاده از روش عددی تفاضل محدود حوزه زمان (FDTD) می‌پردازیم. هدف اصلی، تحلیل پدیده جفت‌شدگی پلاسمون-اکسایتون-پلاسمون (PEP) و واکاوی تأثیر پارامترهای هندسی و ساختاری بر تشکیل حالت‌های آمیخته در این سامانه‌هاست. این پدیده از برهم‌کنش بین پلاسمون‌های سطحی جایگزیده (LSPR) در نانوذرات فلزی و گذارهای اکسایتونی در مولکول‌های سیانین ناشی می‌شود که منجر به ظهور تشدیدهای

خارجی (r_{out}) متغیر الگوسازی شدند؛ به طوری که عرض حلقه ($\Delta r = r_{out} - r_{in}$) در تمام حالت‌ها ثابت و برابر با ۳ نانومتر باقی ماند.

طیف خاموشی به دست آمده از این ساختار، چهار قله متمایز در ناحیه مرئی را نشان می‌دهد که همگی مرتبط با گذارهای اکسایتونی در این نانو ذره هستند. در میان آن‌ها، یک قله برجسته در نزدیکی طول موج ۵۸۵ نانومتر ظاهر می‌شود که با ویژگی‌های نوار ز تطابق دارد و نشان‌دهنده برهم‌کنش‌های همدوس میان اکسایتون‌ها در ساختار انباشت یافته است.

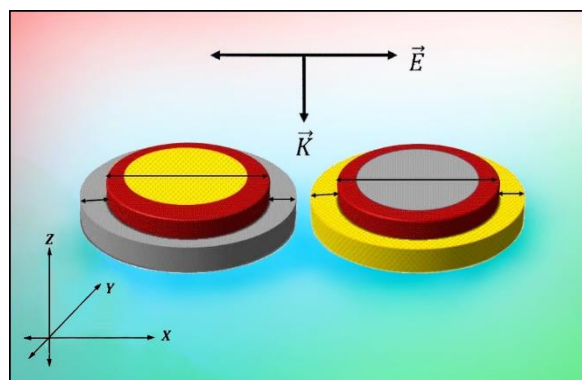
بررسی روند این قله با افزایش شعاع داخلی و خارجی حلقه (در حالی که Δr ثابت نگه داشته شده) نشان می‌دهد که موقعیت قله ابتدا با افزایش اندازه حلقه به سمت طول موج‌های بلندتر (قرمز) جابه‌جا می‌شود. اما از نقطه‌ای به بعد، این جابه‌جایی متوقف شده و قله نوار ز در نزدیکی طول موج ۵۹۰ نانومتر به حالت اشباع می‌رسد؛ به این معنا که با ادامه افزایش اندازه حلقه، دیگر تغییر محسوسی در موقعیت یا شدت این قله دیده نمی‌شود.

در ساختارهای اکسایتونی، افزایش اندازه تنها زمانی به برهم‌کنش‌های همدوس در انباشت‌های اکسایتونی منجر می‌شود که طول همدوسی حالت‌های جمعی نیز افزایش یابد. زمانی که اندازه حلقه از طول مؤثر همدوسی فراتر می‌رود، بخش‌هایی از ساختار دیگر در فرآیند جفت‌شدگی همدوس شرکت نمی‌کنند و بنابراین پاسخ طیفی به صورت طبیعی به اشباع می‌رسد. این اشباع جابه‌جایی انرژی را می‌توان با استفاده از یک الگوی سری هندسی به صورت زیر بیان کرد:

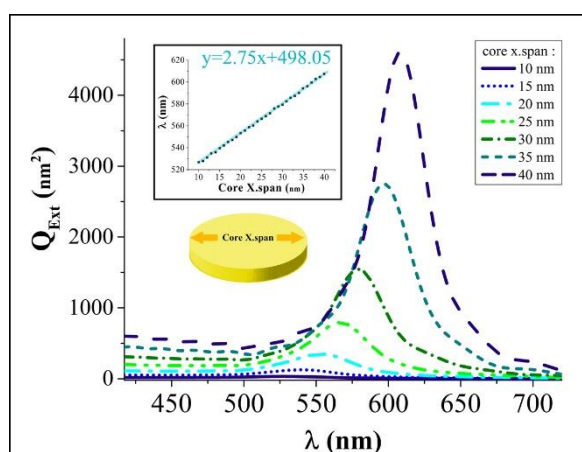
$$\Delta E_N = \sum_{k=0}^p \frac{J}{\psi^k} \quad (5)$$

$$N = \psi^{p+1}$$

که در آن، ΔE_N نشان دهنده جابه‌جایی انرژی برای خوشه‌ای شامل N مولکول است و J ثابت جفت‌شدگی دو قطبی-دو قطبی بین مولکول‌های نزدیک‌ترین همسایه است. هر جمله از جمع بیانگر کاهش شدت برهم‌کنش‌ها با افزایش فاصله مولکول‌ها است، به طوری که هر گام شدت برهم‌کنش نصف گام قبلی می‌شود.



شکل ۱. طرحی از نانو ذرات قرصی پلکسیمونی.



شکل ۲. طیف خاموشی نانوذره منفرد طلا با ضخامت ثابت ۵ نانومتر و قطر متغیر از ۱۰ تا ۴۰ نانومتر با گام ۵ نانومتر. معادله خط برازش یافته بر موقعیت قله پلاسمونی، درون نمودار نمایش داده شده است.

خواص دی‌الکتریک مولکول‌های سیانین نیز با در نظر گرفتن گذارهای اکسایتونی آن‌ها الگوسازی شده‌اند. این رویکرد اطمینان می‌دهد که نتایج به دست آمده از دقت کافی برای تحلیل فیزیک حاکم بر سامانه برخوردار باشد. تحلیل طیف‌های خاموشی نانوذرات منفرد نشان می‌دهد که تغییر پارامترهای هندسی ساختار، به ویژه قطر نانوذره فلزی، نقش بسزایی در جابه‌جایی قله‌های طیفی دارد. افزایش قطر قرص‌های فلزی باعث جابه‌جایی قرمز قابل توجه در قله‌های طیفی می‌شود. مطابق با نتایج شبیه‌سازی، این جابه‌جایی طیفی برای قله‌های پلاسمونی اصلی برای نانوذرات منفرد به صورت خطی با قطر نانوذره تغییر می‌کند (شکل‌های ۳ و ۲).

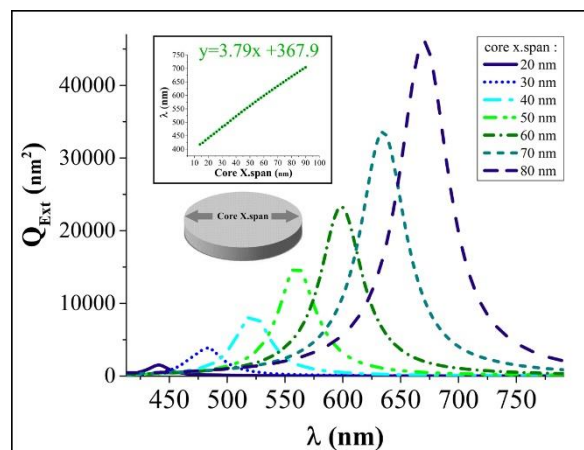
در ادامه پاسخ طیفی نانوذره اکسایتونی از جنس رنگ‌دانه سیانین با انباشت J بررسی شده است (شکل ۴). این نانوذرات به صورت حلقه‌هایی با ضخامت ۵ نانومتر و شعاع‌های داخلی (r_{in}) و

طراحی ساختارهای اکسایتونی، افزایش بی‌رویه اندازه لزوماً منجر به بهبود پاسخ نوری نمی‌شود. در واقع، برای دستیابی به بیشینه بازده، ابعاد ساختار باید با در نظر گرفتن طول همدوسی و محدودیت‌های هندسی در برهم‌کنش‌های دو قطبی - دو قطبی بهینه‌سازی شوند.

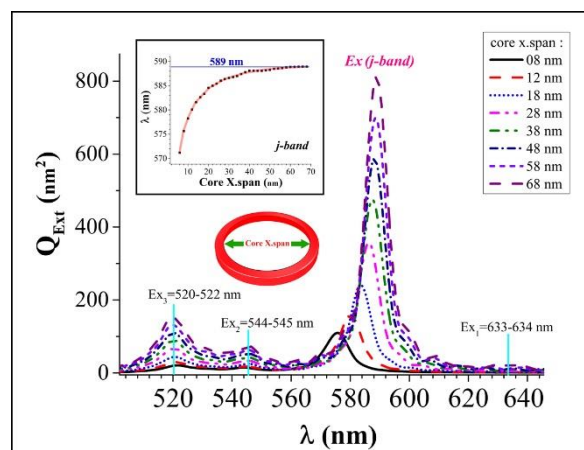
پس از تحلیل دقیق پاسخ طیفی نانوذرات اکسایتونی و پلاسmoni منفرد و شناسایی ویژگی‌های کلیدی آن‌ها از جمله رفتار نوار J و رفتار خطی افزایش به سمت طول موج‌های قرمز قله‌های پلاسmoni با افزایش قطر، اکنون گام بعدی بررسی ساختار آمیخته است. در این مرحله، نانوذره اکسایتونی با دو مؤلفه پلاسmoni ترکیب شده تا اثر برهم‌کنش پلاسmoni-اکسایتون-پلاسmoni بر طیف نوری، موقعیت و شدت قله‌ها، و پدیده‌هایی مانند شکافتگی رابی و جفت‌شدگی بررسی گردد.

در راستای تحلیل پاسخ نوری ساختار اول (نانو ذره سمت چپ در شکل ۱)، قطر قرص نقره‌ای از ۱۸ تا ۷۶ نانومتر با گام‌های ۴ نانومتر افزایش یافت. قطر قرص طلا و پوسته اکسایتونی نیز در هر مرحله به تناسب مقیاس شدند. برای هر اندازه از نانو ذره آمیخته، طیف خاموشی ساختار به صورت عددی به دست آمد و شاخه‌های طیفی استخراج شدند (شکل ۵).

نتایج نشان دادند که سه شاخه مشخص در طیف خاموشی قابل شناسایی هستند. با افزایش قطر قرص نقره، شاخه بالایی در اندازه‌های کوچک با شیب زیاد دچار انتقال قرمز می‌شود، اما از حدود ۶۴ نانومتر این روند به شدت کاهش می‌یابد. شاخه میانی در اندازه‌های کوچک تغییرات اندکی دارد ولی از حدود قطر ۵۴ نانومتر جابه‌جایی آن سریع‌تر می‌شود. شاخه پایینی نیز در اندازه‌های کوچک تقریباً ثابت مانده و پس از ۶۴ نانومتر تغییرات آن افزایش می‌یابد. همچنین شدت نسبی قله‌ها نشان می‌دهد که در ابعاد کوچک‌تر شاخه بالایی غالب است، اما با بزرگ‌تر شدن اندازه نانوذره ابتدا شاخه میانی و سپس شاخه پایینی از نظر شدت پیشی می‌گیرند. این نکات بیانگر آن است که جابه‌جایی طیفی و رفتار شاخه‌های ایجاد شده صرفاً ناشی از افزایش حجم نانوذره و انتقال قرمز مربوط به آن نیست، بلکه به علت جفت‌شدگی حالت‌های اپتیکی اولیه است.



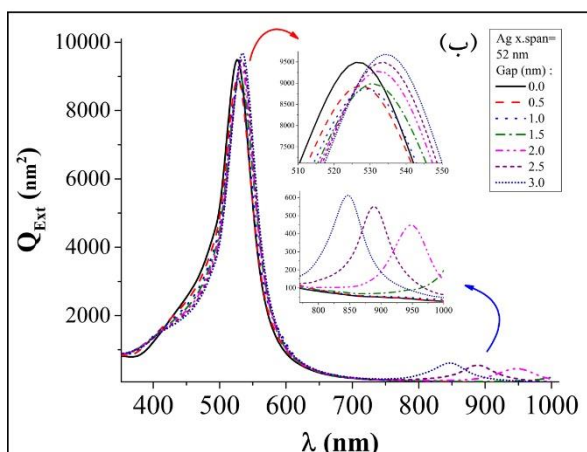
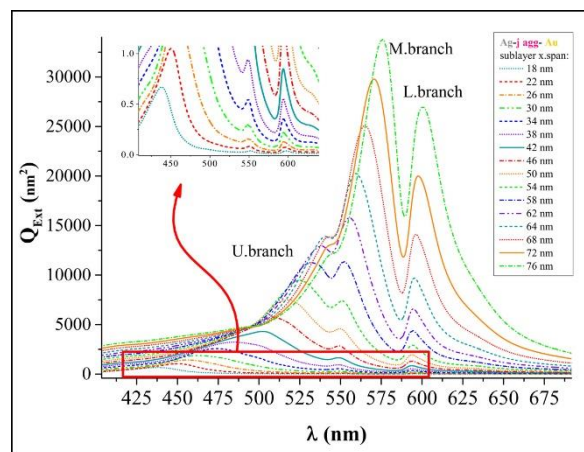
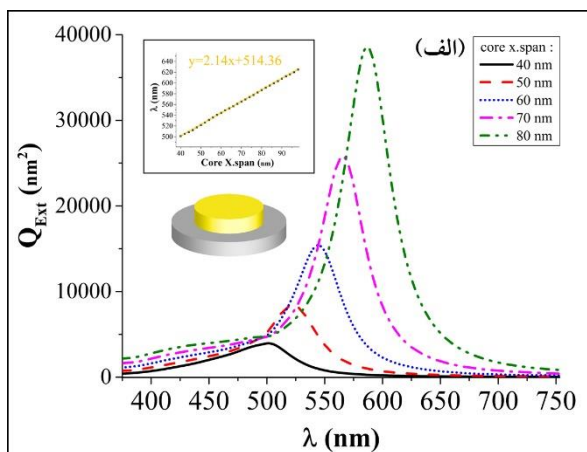
شکل ۳. طیف خاموشی نانوذره منفرد شامل قرص نقره با ضخامت ثابت ۵ نانومتر و قطر متغیر از ۲۰ تا ۸۰ نانومتر با گام ۱۰ نانومتر. معادله خط برازش‌یافته برای موقعیت قله پلاسmoni درون نمودار نمایش داده شده است.



شکل ۴. طیف خاموشی نانوحلقه اکسایتونی از جنس مولکول‌های سیانین با انباشت J در محیط خلأ برای قطر داخلی مختلف با عرض حلقه ثابت ۳ نانومتر، چهار قله اکسایتونی متمایز قابل شناسایی‌اند. قله غالب در ۵۸۵ نانومتر (j-band) با افزایش شعاع به سمت قرمز جابه‌جا شده و در نزدیکی ۵۹۰ نانومتر به اشباع می‌رسد. روند تغییرات نوار J در گوشه تصویر نمایش داده شده است.

در نتیجه، با افزایش تعداد مولکول‌ها، جابه‌جایی انرژی افزایش می‌یابد اما به دلیل کاهش سریع شدت برهم‌کنش‌های دو قطبی، مقدار آن به مقدار نهایی و ثابت $\lim_{N \rightarrow \infty} \Delta E_N = 2J$ میل می‌کند و بنابراین پاسخ طیفی اشباع می‌شود. این الگو به خوبی نشان می‌دهد که علی‌رغم افزایش اندازه ساختار، به دلیل کاهش شدت برهم‌کنش‌ها با فاصله، تغییرات انرژی به سمت مقدار اشباع نهایی همگرا می‌شوند [۳۹].

در مجموع، مشاهده اشباع قله j-band نشان می‌دهد که در



شکل ۵. طیف خاموشی ساختار نانوقرص هم‌مرکز شامل قرص نقره (پایینی)، قرص طلا (بالایی) و پوسته اکسایتونی از جنس سیانین با انباشت ز در اطراف قرص طلا. با افزایش اندازه ساختار، سه شاخه متمایز در طیف خاموشی ظاهر می‌شوند که به ترتیب به شاخه‌های پایینی (L-branch)، میانی (M-branch) و بالایی (U-branch) نسبت داده می‌شوند.

در تحلیل اولیه، انتظار می‌رفت رفتار غیرمتقاطع بین حالت‌های پلاسمونی و اکسایتونی در محل تلاقی بسامدی میان قله‌های پلاسمون منفرد (قرص نقره یا طلا) و بسامد اکسایتون ظاهر شود. با این حال، نتایج به دست آمده نشان داد که محل بروز رفتار غیرمتقاطع دقیقاً بر محل تلاقی طیفی این مدهای منفرد منطبق نیست. این عدم انطباق باعث شد فرضیه جدیدی مطرح شود: این که منشأ اصلی این برهم‌کنش پیچیده در واقع یک حالت ترکیبی دیگر است. با بررسی‌های بیشتر و تحلیل دقیق‌تر، مشخص شد که رفتار متقاطع، مربوط به جفت‌شدگی دایمر فلزی تشکیل شده از قرص طلا و نقره با اکسایتون‌های سیانین است.

شکل ۶. الف. طیف خاموشی دایمر فلزی شامل قرص‌های هم‌مرکز طلا-نقره برای مقادیر مختلف قطر قرص نقره (Ag) در حالت اتصال کامل ($gap = 0\text{ nm}$). با افزایش قطر قرص نقره، یک حالت پلاسمونی قوی در ناحیه مرئی با انتقال قرمز واضح ظاهر می‌شود. وابستگی خطی بین موقعیت قله و قطر قرص نقره در شکل داخلی نشان داده شده است. ب. طیف خاموشی همان ساختار برای قطر ثابت 52 nm نقره (46 nm طلا) و فواصل مختلف بین قرص‌ها.

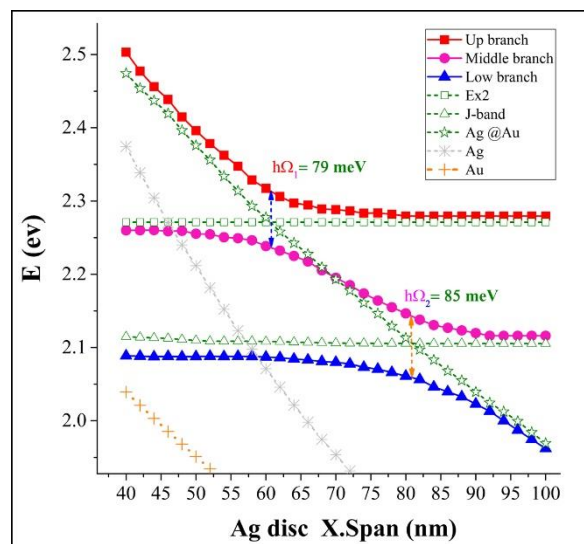
از آنجا که این قله دوم در فاصله صفر تقریباً ناپدید می‌شود، در تحلیل‌های ما این حالت لحاظ نشده است. شناسایی و بررسی دقیق دایمر فلزی، کلید درک رفتار غیرمتقاطع خواهد بود. به بیان دیگر، یکی از وجوه تمایز این مطالعه این بود که منشأ رفتار غیرمتقاطع نه در مدهای پلاسمونی منفرد طلا و نقره با اکسایتون‌های سیانین، بلکه در مد ترکیبی دایمر فلزی آنها با اکسایتون‌های سیانین، نهفته است؛ که پیش‌تر به صورت ضمنی در ساختار حضور داشت اما نقش آن روشن نشده بود.

از این رو، برای توصیف جفت‌شدگی ابتدا به بررسی یک نانوذره دولایه شامل قرص بالایی طلا (بدون پوسته سیانین) و قرص زیرین نقره، می‌پردازیم. در شکل ۶. الف، فاصله بین قرص طلا و نقره صفر است و یک قله قوی متفاوت از قله‌های منفرد طلا و نقره، مشاهده می‌شود که حالت پیوندی دایمر فلزی را نشان می‌دهد و با افزایش قطر نانوذره روند خطی جابه‌جایی قرمز این قله، در شکل داخلی مشاهده می‌شود. در این شرایط، حالت ضدپیوندی به دلیل تداخل و اتلاف زیاد قابل تفکیک نیست. اما با افزایش فاصله بین دو قرص مطابق شکل ۶. ب، حالت دوم نیز به آرامی ظاهر می‌شود و با شدت کمتر در طول موج‌های بالاتر قابل شناسایی است.

دایمر فلزی $Au @ Ag$ و دو گذار اکسایتونی (Ex_2 و J-band) مشاهده می‌شود که نشان‌دهنده شکل‌گیری حالت‌های آمیخته پلاسمون-اکسایتون-پلاسمون (پلکسیمون) است. انرژی شکافتگی رابی ($\hbar\Omega$) از فاصله انرژی بین شاخه‌های بالا، پایین و میانی استخراج شد. مقدار شکافتگی رابی حدود 85 meV برای شاخه Ex_2 با $Ag @ Au$ و حدود 79 meV برای شاخه J-band با $Ag @ Au$ به دست آمد. حضور شکافتگی انرژی بین شاخه‌ها در نواحی تشدید نشان‌دهنده آمیختگی بین حالت پلاسمونی و حالت‌های اکسایتونی j-band و Ex_2 است. مکان نقاط واکوکی صفر ($\delta \approx 0$) در تقاطع طیف $Ag @ Au$ با j-band و Ex_2 در حدود قطرهای 80 و 60 نانومتر است.

در شکل ۸ الف (قطر قرص نقره 80 نانومتر)، طیف خاموشی $Ag @ Au$ (خط چین آبی) با حالت اکسایتونی j-band (خط چین قرمز) در ناحیه طول موجی حدود 590 تا 600 نانومتر هم‌پوشانی دارد. این هم‌پوشانی نزدیک، بیانگر واکوکی تقریباً صفر ($\delta \approx 0$) بین این دو حالت است. طیف آمیخته (خط مشکی) در این نقطه شکافتگی آشکار رابی را نشان می‌دهد، به گونه‌ای که دو قله مشخص با یک دره در مرکز ظاهر می‌شود. این ویژگی دال بر شکل‌گیری دو حالت پلکسیمونی آمیخته در اثر آمیختگی PEP است.

در شکل ۸ ب، طیف پلاسمونی $Ag @ Au$ در حدود 530 تا 540 نانومتر قرار گرفته، و حالت اکسایتونی Ex_2 نیز در این ناحیه حضور دارد. در این حالت، واکوکی میان $Ag @ Au$ و Ex_2 تقریباً صفر است، در حالی که j-band نسبت به حالت پلاسمون فاصله دارد. در مجموع، تحلیل این دو نمودار در کنار نمودار شکافتگی انرژی، نشان می‌دهد که امکان مهندسی طیف‌های نوری و موقعیت حالت‌های آمیخته از طریق تنظیم قطر قرص فلزی وجود دارد. همچنین، بر اساس محل‌های واکوکی صفر، که تابعی از اندازه نانوذره است، می‌توان کنترل دقیقی بر جفت‌شدگی با هر یک از حالت‌های اکسایتونی j-band و Ex_2 اعمال کرد.



شکل ۷. نمودار شکافتگی انرژی مربوط به ساختار آمیخته شامل دایمر $Ag @ Au$ و پوسته اکسایتونی، که در آن موقعیت انرژی حالت‌های آمیخته برحسب شعاع قرص نقره‌ای تغییر داده شده است. سه شاخه مشخص شامل شاخه بالایی (Up.branch) میانی (Middle.branch) و پایینی (Low.branch) به وضوح مشاهده می‌شوند.

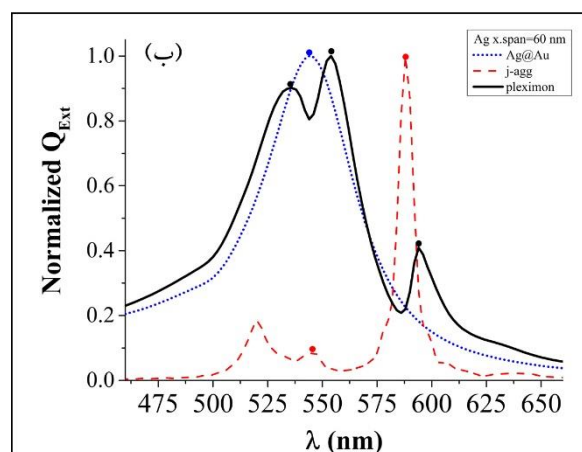
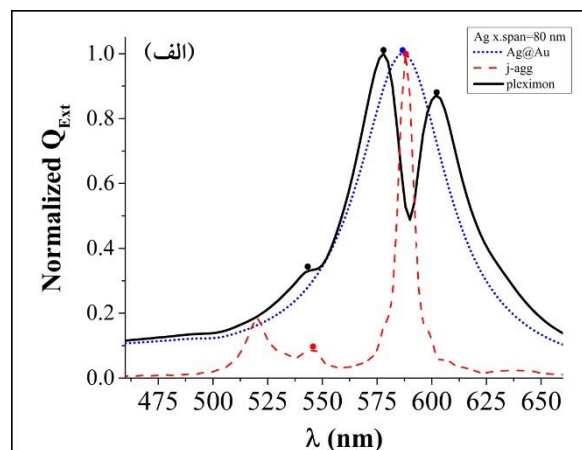
به این ترتیب پدیده جفت‌شدگی به صورت دو مرحله‌ای و ترتیبی پدیدار می‌گردد. یعنی ابتدا دو نانوذره فلزی با هم جفت شده و یک حالت ترکیبی (دایمر فلزی) را شکل می‌دهند و سپس این دایمر با حالت‌های برانگیخته حلقه اکسایتونی جفت می‌شود و طیف خاموشی ارائه شده در شکل ۵ به وجود می‌آید. این ساختار ترتیبی برهم‌کنش، به وضوح رفتار متفاوتی نسبت به الگوهای ساده دو نوسانگر نشان می‌دهد و بر اهمیت استفاده از الگوهای چندحالتی نظیر الگوی سه‌نوسانگری را برای توصیف دقیق برهم‌کنش‌های پلاسمون-اکسایتون-پلاسمون تأکید می‌کند.

برای پیش‌بینی و داشتن درکی کامل‌تر از وقوع جفت‌شدگی همزمان بین حالت‌های اولیه و یا جفت‌شدگی ترتیبی بین آنها می‌توانیم، شکافتگی انرژی حالت‌ها را مطالعه کنیم. در شکل ۷، این نمودار به‌عنوان تابعی از قطر قرص نقره (که به‌طور هم‌زمان قطر قرص طلا و قطر حلقه اکسایتونی نیز با آن تغییر می‌کنند) رسم شده است. همان‌طور که مشاهده می‌شود در محل تلاقی نمودار پلاسمون‌های منفرد (نقره یا طلا) و نمودار حالت‌های اکسایتونی، شکافتگی انرژی ظاهر نمی‌شود.

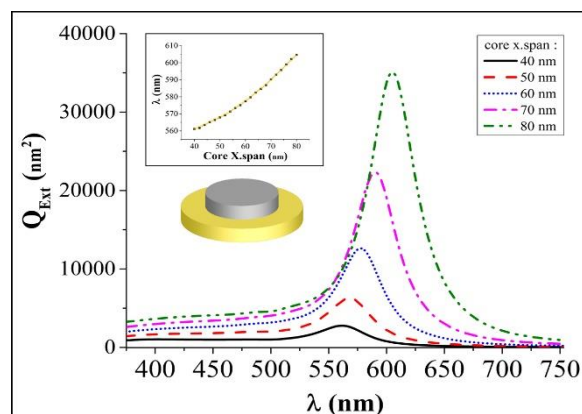
مطابق با شکل ۷، شکافتگی رابی آشکاری بین حالت پلاسمونی

در شکل ۱، دو پیکربندی مختلف برای نانوذره آمیخته پیشنهادی نمایش داده شد. ساختار اول (شکل سمت چپ) شامل قرص نقره‌ای در پایین، قرص طلائی در بالا، و یک پوسته اکسایتونی در مجاورت قرص طلا است که در بخش‌های پیشین به صورت کامل تحلیل شد. به منظور بررسی تأثیر آرایش فضایی اجزای سازنده بر ویژگی‌های حالت‌های آمیخته حاصل از برهم‌کنش PEP، در این بخش ساختار دوم (شکل ۱ سمت راست) مورد بررسی قرار می‌گیرد؛ ساختاری که در آن جایگاه دو نانوقرص فلزی با یکدیگر جابه‌جا شده و قرص طلا در پایین و قرص نقره در بالا قرار گرفته است. پوسته اکسایتونی نیز در این حالت به گونه‌ای تنظیم شده که مستقیماً اطراف قرص نقره‌ای بالایی قرار می‌گیرد. هدف از این بازآرایی هندسی، ارزیابی میزان حساسیت حالت‌های آمیخته به موقعیت نانوذرات فلزی و توزیع میدان‌های موضعی است. در ادامه، نتایج شبیه‌سازی طیف‌های خاموشی و رفتار غیر متقاطع ساختار دوم ارائه شده و با حالت قبلی مقایسه می‌گردد. طیف خاموشی دایمر فلزی $Ag @ Au$ بدون حضور اکسایتون بررسی شده است، نتایج این شبیه‌سازی در شکل ۹ نشان داده شده است. رفتار قلّه پلاسمونی حاصل از این دایمر نسبت به تغییر قطر قرص‌ها تقریباً خطی است. بررسی این طیف دایمر فلزی امکان مقایسه دقیق و تعیین نقاط واکوکی صفر در ساختار آمیخته جدید را تسهیل می‌کند.

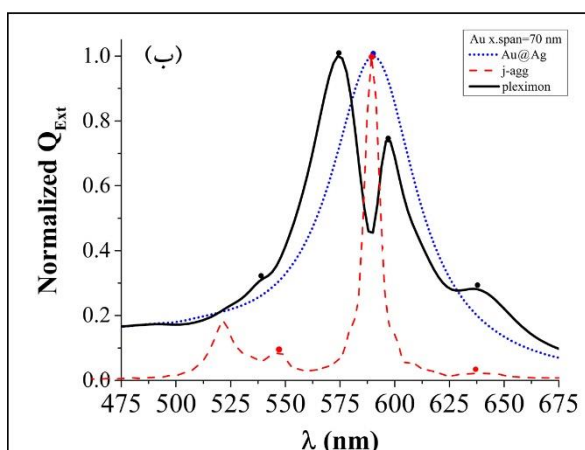
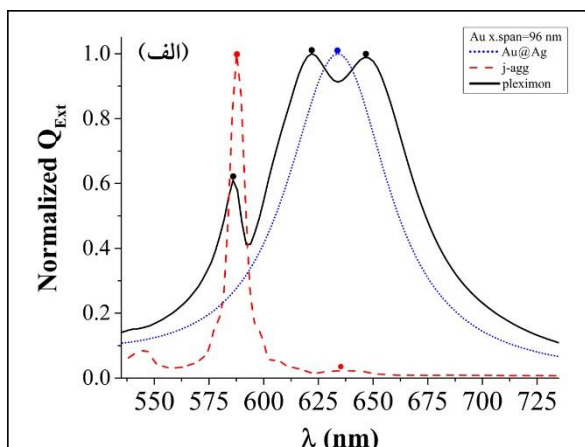
در ادامه طیف خاموشی ساختار آمیخته $Ag @ Au$ با لایه اکسایتونی مورد بررسی قرار گرفت و در شکل ۱۰ نشان داده شده است که در آن قطر قرص طلا از ۱۸ تا ۷۶ نانومتر با گام ۴ نانومتر تغییر می‌کند و در هر مرحله، قرص نقره و پوسته اکسایتونی با آن مقیاس شده است. سه شاخه مشخص از حالت‌های آمیخته در این طیف قابل شناسایی هستند که به ترتیب با عنوان‌های شاخه بالایی، میانی و پایینی برچسب‌گذاری شده‌اند. شاخه بالایی (U.branch) با افزایش قطر نسبت به سایر شاخه‌ها دچار جابه‌جایی قرمز بیشتری شده و به وضوح وابسته به حالت‌های پلاسمونی ساختار فلزی است. شاخه میانی (M.branch) در اندازه‌های نمایش داده شده، تنها جابه‌جایی جزئی دارد و نسبت به تغییرات قطر تقریباً پایدار باقی می‌ماند، که نشانگر خاستگاه اکسایتونی آن است.



شکل ۸ مقایسه طیف خاموشی بهنجار شده ساختار آمیخته شامل دایمر $Ag @ Au$ و پوسته اکسایتونی، که در آن هر طیف بر مقدار بیشینه خود تقسیم شده است. الف. شعاع ۸۰ نانومتر، که در آن واکوکی بین حالت پلاسمونی و j-band تقریباً صفر است و شکافتگی مشخص رابی به وضوح در طیف آمیخته دیده می‌شود. ب. شعاع ۶۰ نانومتر، که در آن واکوکی بین حالت پلاسمونی و EX_2 نزدیک به صفر است.



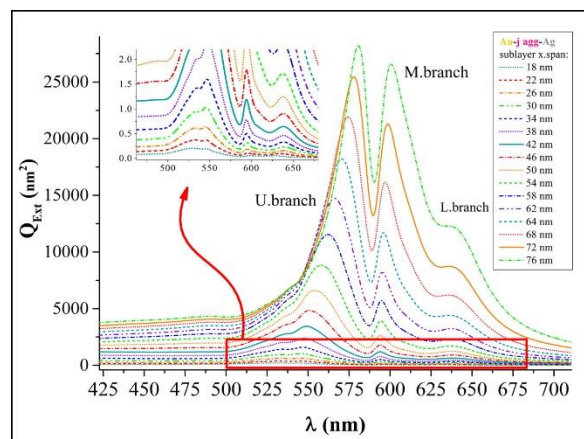
شکل ۹. طیف خاموشی دایمر فلزی $Ag @ Au$ در پیکربندی که در آن قرص طلا پایین و قرص نقره در بالا قرار دارد، بدون حضور ماده اکسایتونی. در این شبیه‌سازی، قطر قرص طلائی از ۴۰ تا ۸۰ نانومتر با گام ۱۰ نانومتر افزایش یافته و قطر قرص نقره در هر حالت ۱۲ نانومتر کوچک‌تر از قرص طلا در نظر گرفته شده است.



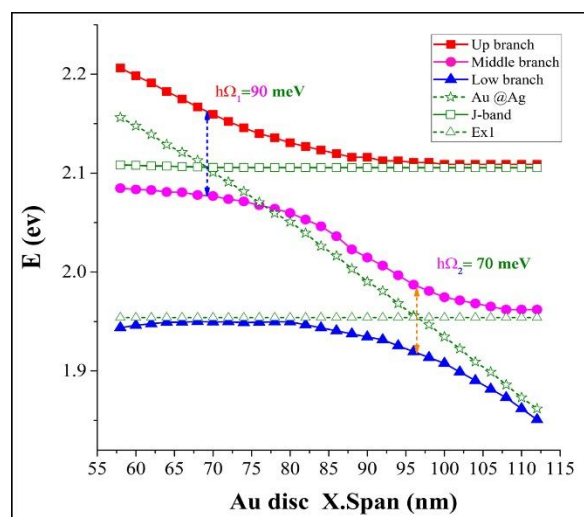
شکل ۱۲. طیف‌های خاموشی به‌نجار شده ساختار آمیخته جدید شامل دایمر $Ag @ Au$ با پوسته اکسایتونی در دو هندسه متفاوت، که در آن‌ها هر طیف بر مقدار بیشینه خودش تقسیم شده است. الف. قطر قرص طلا ۷۰ نانومتر که در آن واکوکی بین $Ag @ Au$ و j -band تقریباً صفر است و شکافتگی رابی 90 meV مشاهده می‌شود؛ ب. قطر قرص طلا ۹۵ نانومتر که در آن واکوکی بین $Ag @ Au$ و Ex_1 صفر بوده و شکافتگی رابی 70 meV دیده می‌شود. در هر دو نمودار، طیف‌های خاموشی اجزای منفرد و طیف آمیخته نشان داده شده‌اند.

چنین رفتاری شاخصه حضور آمیختگی PEP در سامانه است.

برای تحلیل دقیق‌تر حالت‌های آمیخته حاصل از برهم‌کنش PEP در ساختار جدید، نمودار شکافتگی انرژی در شکل ۱۱ استخراج شد که انرژی قله‌های طیفی را به‌عنوان تابعی از قطر قرص طلا نمایش می‌دهد. در این ساختار، سه مؤلفه طیفی اصلی شامل حالت پلاسمونی $Ag @ Au$ و دو حالت اکسایتونی j -band و Ex_1 درگیر برهم‌کنش بوده‌اند. حاصل این برهم‌کنش سه‌گانه، شکل‌گیری سه شاخه آمیخته مشخص با برچسب‌های U.branch، M.branch، و L.branch است.



شکل ۱۰. طیف خاموشی ساختار آمیخته $Ag @ Au$ در حضور یک پوسته اکسایتونی J-aggregate مربوط به نانو ذره آمیخته دوم (قرص زیرین طلا). شعاع قرص طلا از ۱۸ تا ۷۶ نانومتر با گام ۴ نانومتر افزایش یافته. سه شاخه آمیخته مشخص شامل شاخه بالایی (U.branch)، میانی (M.branch) و پایینی (L.branch) در طیف دیده می‌شوند.



شکل ۱۱. نمودار شکافتگی انرژی برای ساختار آمیخته شامل دایمر $Ag @ Au$ و دو حالت اکسایتونی j -band و Ex_1 . شعاع قرص طلا از ۵۵ تا ۱۱۵ نانومتر تغییر کرده است. سه شاخه آمیخته حاصل از برهم‌کنش این سه حالت نشان‌دهنده آمیختگی PEP است.

شاخه پایینی (L.branch) نیز تقریباً در موقعیت ثابتی قرار دارد و تغییرات آن در اندازه ۱۸ تا ۷۶ نانومتر بسیار ناچیز است. این الگو نشانه‌ای از شکافتگی انرژی ناشی از برهم‌کنش بین حالت‌های پلاسمونی و اکسایتونی است.

بزرگ‌نمایی درج‌شده در گوشه بالا-چپ نمودار نیز به وضوح نشان می‌دهد که دو حالت اکسایتونی j -band و Ex_1 در این بازه طول‌موجی حضور دارند و طیف پلاسمونی به‌صورت قابل توجهی با آن‌ها آمیخته شده است.

فاصله واکوکی و بهینه‌سازی انرژی جفت‌شدگی بین حالت‌های پلاسمونی و اکسایتونی طراحی شد.

نتایج تحلیل طیف‌ها نشان‌دهنده سه شاخه متمایز با عنوان شاخه پایین، شاخه میانی و شاخه بالا بود که هر یک نمایانگر حالت‌های آمیخته مستقل ناشی از برهم‌کنش ترتیبی پلاسمون-اکسایتون-پلاسمون (PEP) در ساختار هستند. این سه شاخه، نشانگر تشکیل حالت‌های آمیخته با ویژگی‌های اپتیکی و الکترونی منحصر به فرد بوده و نقش کلیدی در انتقال انرژی و رفتار طیفی سامانه ایفا می‌کنند.

مقادیر شکافتگی رابی به عنوان شاخص اصلی شدت آمیختگی به طور دقیق استخراج شد. این مقادیر با توجه به ساختار و ویژگی‌های میرایی موجود در نانوذرات، نشان‌دهنده جفت‌شدگی قابل توجه و پایدار حالت‌های آمیخته است.

علاوه بر این، تحلیل دقیق طیف‌های خاموشی نشان داد که افزایش اندازه قطر نانوذره موجب تقویت میدان‌های پلاسمونی و تغییر الگوی پراکندگی نور می‌شود، که به نوبه خود موجب جابه‌جایی و تغییر شکل شاخه‌های طیفی شده است. به‌ویژه، جابه‌جایی واکوکی صفر به وسیله تنظیم هندسی نانوذرات فلزی به صورت کمی مورد بررسی قرار گرفت و نقش حیاتی آن در تنظیم دقیق بسامد حالت‌های آمیخته به اثبات رسید.

در کل، نتایج حاصل به‌وضوح نشان می‌دهد که می‌توان با تنظیم دقیق پارامترهای ساختاری نانوذرات فلزی و کنترل میزان جفت‌شدگی، ویژگی‌های طیفی و اپتیکی ساختارهای آمیخته پلاسمون-اکسایتون-پلاسمون (PEP) را به‌طور دقیق مهندسی و کنترل کرد. این پژوهش مسیر جدیدی را برای طراحی و توسعه نسل پیشرفته‌ای از دستگاه‌های نانوفوتونی، حسگرهای زیستی با حساسیت بالا و سامانه‌های آمیخته هموار می‌سازد.

مقدار شکافتگی رابی میان $Ag @ Au$ و j -band برابر با 90 meV و میان $Ag @ Au$ و Ex_1 حدود 70 meV به‌دست آمده است، این نتایج اهمیت چپ‌سوی هندسی و ویژگی‌های طیفی در طراحی سامانه‌های آمیخته PEP را برجسته می‌سازند.

به‌منظور تحلیل دقیق‌تر، ساختار جدید در دو قطر منتخب مورد بررسی قرار گرفت. در هندسه با قطر 70 nm برای قرص طلا، بسامد تشدید دایمر پلاسمونی به‌طور تقریبی با انرژی حالت اکسایتونی j -band برابر بوده و شرایط واکوکی صفر بین آن‌ها برقرار است. در این حالت، شکافتگی انرژی قابل توجهی معادل 90 meV میان شاخه‌های آمیخته در طیف خاموشی مشاهده می‌شود. از سوی دیگر، در قطر 96 nm ، بسامد تشدید $Ag @ Au$ با حالت اکسایتونی Ex_1 هم‌پوشانی دارد و شکافتگی رابی برابر 70 meV بین شاخه‌های مرتبط ثبت شده است (شکل ۱۲).

۴. نتیجه‌گیری

در این مطالعه، با بهره‌گیری از روش شبیه‌سازی عددی تفاضل محدود حوزه زمان (FDTD)، ساختار آمیخته سه‌مولفه‌ای شامل دو نانوذره فلزی (قرص نقره و قرص طلا) و یک نانوپوسته اکسایتونی از جنس مولکول‌های سیانین با انباشت J با هدف بررسی دقیق برهم‌کنش‌های پلاسمون-اکسایتون-پلاسمون (PEP) مورد تحلیل قرار گرفت.

به‌منظور کنترل دقیق ویژگی‌های طیفی و حالت‌های آمیخته ایجاد شده، تغییرات هندسی شامل افزایش گام به‌گام قطر قرص نقره و تنظیم متناسب قطر قرص طلا و پوسته اکسایتونی در هر مرحله اعمال گردید.

این تغییر مکان‌های هندسی به صورت هدفمند به منظور اصلاح

مراجع

1. C E Petoukhoff, K M Dani, and D M O'Carroll, *Polymers* **12** (2020) 2141.
2. Y Chen and M Sun, *Nanoscale* **15** (2023) 11834.
3. L Greten, *et al.*, *Phys. Rev. B* **111** (2025) 205438.
4. Y M Lee, S E Kim, and J E Park, *Nano Convergence* **10** (2023) 34.
5. F Stete, M Bargheer, and W Koopman, *Nanoscale* **15** (2023) 16307.
6. Y Tang, *et al.*, *Light: Sci. Appl.* **11** (2022) 94.
7. S Cho, *et al.*, *Sci. Adv.* **7** (2021) eabf3362.
8. F Freire Fernández, *et al.*, *Nature Reviews Materials* **10** (2025) 604.

9. K L Kelly, *et al.*, *J. Phys. Chem. B* **107** (2003) 668.
10. S A Maier, *et al.*, *Adv. Mater.* **13** (2001) 1501.
11. P Hashemi, *et al.*, *Journal of the Optical Society of America B*, **42** (2025) 1366.
12. P Vasa and C Lienau, *ACS Photonics* **5** (2018) 2.
13. G Zengin, *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **114** (2015) 157401.
14. P Törmä and W L Barnes, *Rep. Prog. Phys.* **78** (2014) 013901.
15. K Santhosh, *et al.*, *Nat. Commun.* **7** (2016) 11823.
16. Y Niu, *et al.*, *Nanophotonics* **12** (2023) 735.
17. S Balci and C Kocabas, *Opt. Lett.* **40** (2015) 3424.
18. E Yaghooti, F Babaei, and R Liu, *Nanoscale* **14** (2025) 8933.
19. Z He, *et al.*, *Nanomaterials* **12** (2022) 1242.
20. V S Lebedev and A D Kondorskiy, *Phys. Usp.* **68** (2025) 46.
21. M Zhang, *et al.*, *Nanophotonics* **12** (2023) 3267.
22. H Yang, *et al.*, *J. Phys. Chem. C* **121** (2017) 25455.
23. J Dey, A Viridi, and M Chandra, *Nanoscale* **15** (2023) 17879.
24. Y Niu, H Xu, and H Wei, *Phys. Rev. Lett.* **128** (2022) 167402.
25. K Santhosh, *et al.*, *Nat. Commun.* **7** (2016) 11823.
26. J Bellessa, *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **93** (2004) 036404.
27. R Chikkaraddy, *et al.*, *Nature* **535** (2016) 127.
28. B Zhang and W Liang, *J Chem. Phys.* **152** (2020) 014302.
29. P Vasa and C Lienau, *ACS Photonics* **5** (2018) 2.
30. J B Khurgin, *Nat. Nanotechnol.* **10** (2015) 2.
31. S Link and M A El-Sayed, *J. Phys. Chem. B* **103** (1999) 4212.
32. K L Kelly *et al.*, *J. Phys. Chem. B* **107** (2003) 668.
33. C Novo, A M Funston, and P Mulvaney, *Nat. Nanotechnol.* **3** (2008) 598.
34. E Prodan, *et al.*, *Science* **302** (2003) 419.
35. T Sandu, *J Nanopart. Res.* **14** (2012) 1.
36. M Sadeghzadeh, A Mohammadi, and T Jalali, *Results Chem.* **16** (2025) 102450.
37. Y Tang, *et al.*, *Light: Sci. Appl.* **11** (2022) 94.
38. J Qin, *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **124** (2020) 063902.
39. G D Scholes, *Faraday Discuss.* **221** (2020) 265.