



بیست و پنجمین کنفرانس اپتیک و فوتونیک ایران و یازدهمین کنفرانس مهندسی و فناوری فوتونیک ایران، دانشگاه شیراز، شیراز، ایران.
۹-۱۱ بهمن ۱۳۹۷



افزایش نرخ گذار تابش فلورسانس با بهره کوانتومی بالا با استفاده از فرامواد هذلولوی چندلایه‌ای

مریم محمودی، مریم اردکانی، میثم گزمه و سید حسن توسلی

ایران، تهران، ولنجک، دانشگاه شهید بهشتی، پژوهشکده لیزر و پلاسما

چکیده - افزایش نرخ گذار خودبخودی تابشگرهای کوانتومی با استفاده از نانوساختارها، با توجه به رشد روز افزون علوم و تکنولوژی برهمکنش نور- ماده در ابعاد نانومتری، در سال های اخیر بسیار مورد مطالعه و کاربرد قرار گرفته است. فرامواد هذلولوی بدلیل فراهم آوردن چگالی حالت های فوتونی زیاد، از جمله افزاره های قابل توجه در این زمینه به حساب می آیند. در این مقاله، با استفاده از شبیه سازی FDTD و محاسبات تابع گرین، به بررسی چگالی حالت های فوتونی افزاره فراماده هذلولوی متشکل از ۶ لایه متناوب طلا-آلومینا پرداخته و نرخ گذار خودبخودی به تفکیک گذار غیرتابشی و تابشی (فلورسانس) برای تابشگر کوانتومی در مجاورت ساختار، محاسبه شده است. نتایج افزایش نرخ گذار تابشی با فاکتور ۱۰ برابر و بهره کوانتومی حدود ۵۰ درصد را نشان می دهد.

کلید واژه - افزایش نرخ گذار تابش فلورسانس، چگالی حالت فوتونی، فرامواد هذلولوی، مهندسی اپتیکی.

Fluorescence Decay Rate Enhancement With High Quantum Efficiency Using Multilayer Hyperbolic Metamaterials

Maryam Mahmoodi, Maryam Ardekani, Meisam Gazmeh and Seyed Hassan Tavassoli

Iran, Tehran, Velenjak, Shahid Beheshti University, Laser and Plasma Research Institute

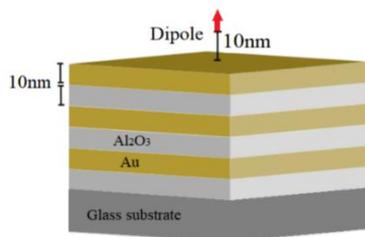
ma_mahmoodi@sbu.ac.ir, m.ardekani@sbu.ac.ir, m_gazmeh@sbu.ac.ir, h-tavassoli@sbu.ac.ir

Abstract- Decay rate enhancement of quantum emitters using nanostructures have been widely studied in the last decades, thanks to the development of science and technology of light-matter interaction in nanoscales. Hyperbolic metamaterials (HMMs) as artificial nanostructures providing high photonic density of states (PDOS) are highly promising in this regard. In the present paper, we investigate PDOS of a hyperbolic metamaterial component consisting of 6 alternating gold-alumina layers, using FDTD simulation and the Green's function. Non-radiative and radiative (fluorescence) spontaneous decay rate enhancement of a quantum emitter nearby the structure is calculated. The results indicate the fluorescence enhancement of a factor of 10 having quantum efficiency of about 50 percent.

Keywords: Fluorescence decay rate enhancement, Hyperbolic metamaterials, Optical engineering, Photonic density of states.

$$\Gamma = \frac{2\pi}{\hbar} |\langle f_k | H_{int} | i_k \rangle|^2 \rho(\hbar\omega_k) \quad (1)$$

به طوری که H_{int} هامیلتونی گذار از تراز برانگیخته i به تراز نهایی f و ρ چگالی حالت‌های در دسترس برای فوتونی است که فرکانسی برابر با فرکانس گذار $\omega = \omega_{if}$ و تکانه‌ای متناظر با بردار \mathbf{k} دارد. چگالی حالت‌های فوتونی به محیطی که تابشگر در آن قرار دارد وابسته است؛ بنابراین با تغییر و مهندسی محیط اطراف تابشگر، چگالی حالت فوتونی می‌تواند افزایش یابد. از روش‌های مرسوم در مهندسی چگالی حالت‌های فوتونی می‌توان به استفاده از ساختارهای مبتنی بر تشدید پلاسمونی [5] و فوتونیک کریستال [6] اشاره کرد. به دلیل وجود اتلاف (کانال‌های غیرتابشی) ساختارهای پلاسمونی دارای محدودیت کاربرد می‌باشند. با معرفی فرامواد هذلولوی مطالعات زیادی برای استفاده از آن‌ها در مهندسی فلورسانس انجام گرفته است. این نوع از فرامواد بدلیل بهره‌گیری از مدهای پلاسمونی حجمی غیرتشدید، چگالی حالت‌های زیاد در پهنای باند بزرگ فراهم می‌کنند.



شکل ۱: افزاره فراماده هذلولوی متشکل از ۶ لایه طلا-آلومینا و دو قطبی الکتریکی به فاصله ۱۰ نانومتر از سطح ساختار.

فرامواد هذلولوی

همزمان با شروع قرن بیست و یکم مواد مصنوع مهندسی شده‌ای (فرامواد) با خواص اپتیکی جدید معرفی شد. فرامواد هذلولوی به عنوان دسته خاصی از این مواد که همگن، غیرمغناطیسی و بسیار ناهمسانگرد هستند، به

مقدمه

مطالعه طیف تابش خودبخودی مولکول‌ها، از ابزارهای اصلی در آنالیز شیمیایی مواد و زیربنای علوم پزشکی به طور ویژه در طیف‌سنجی و تصویرنگاری فلورسانس به شمار می‌رود. تغییر نرخ گذار تابش خودبخودی یک تابشگر کوانتومی (مولکول، یون، فلئورساز، نقطه کوانتومی و...) از اثرات بنیادی در الکتروپدینامیک کوانتومی است که امروزه با توجه به ظهور فناوری‌های ساخت ادوات نانومتری، در ساختارهایی با ابعاد زیر طول موجی مورد مطالعه قرار می‌گیرد. فرامواد هذلولوی [1] نانو ساختارهایی با قابلیت مهندسی بهینه هستند که به دلیل دارا بودن مدهایی با بردار موج بزرگ و همچنین ویژگی ذاتی در افزایش چگالی حالت‌های فوتونی، از توانمندی بالقوه‌ای در کاربردهای حسگری [2]، تصویرنگاری [3] و تقویت تابش فلورسانس [4] برخوردار می‌باشند. در این مقاله افزاره فراماده تشکیل شده از ۶ لایه متناوب طلا و آلومینا^۱ هرکدام با ضخامت ۱۰ nm (۳ سلول واحد) که در طول موج‌های بزرگتر از ۵۵۰ نانومتر در رژیم هذلولوی قرار دارد، مورد مطالعه قرار گرفته است. در شبیه سازی با استفاده از روش FDTD و تابع گرین، مد هذلولوی افزاره بررسی شده و با قرار دادن یک دو قطبی الکتریکی به عنوان یک تابشگر کوانتومی در فاصله ۱۰ nm از سطح ساختار (شکل ۱)، چگالی حالت‌های فوتونی و افزایش نرخ گذار خودبخودی تابشگر محاسبه شده است.

مهندسی تابش فلورسانس

بر اساس قانون طلایی فرمی^۲ نرخ گذار خودبخودی یک تابشگر کوانتومی به چگالی حالت‌های فوتونی موضعی^۳ بستگی دارد که با رابطه زیر نشان داده می‌شود.

¹ Al₂O₃

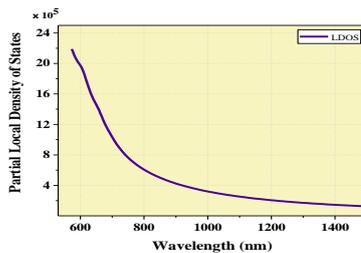
² Fermi's Golden Rule

³ Local Density of States (LDOS)

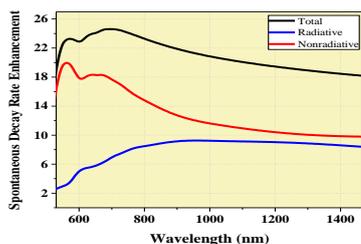
این کمیت یک عامل کلیدی در طراحی بسیاری از افزاره‌های اپتیکی است. در این مقاله برای محاسبه چگالی حالت‌های فوتونی موضعی منتسب به مد هذلولوی از روش تابع گرین استفاده شده و یک دوقطبی الکتریکی در مجاورت افزاره و در راستای عمود بر ساختار (z) قرار داده شده است. بخش موهومی مولفه عمودی بردار گرین طبق رابطه زیر متناظر با چگالی حالت‌های فوتونی خواهد بود [8].

$$\rho = \frac{6\omega}{\pi c^2} \text{Im}(G_z) \quad (2)$$

در شکل ۳ نمودار چگالی حالت‌های فوتونی موضعی نشان داده شده است. همانطور که انتظار می‌رود بیشینه مقدار چگالی حالت‌ها در بازه ۸۰۰-۵۵۰ نانومتر است و در طول موج‌های بزرگتر از ۸۰۰ نانومتر به رفتاری ثابت می‌رسد.



شکل ۳: چگالی حالت‌های فوتونی موضعی در مجاورت افزاره فراماده هذلولوی متشکل از ۶ لایه ۱۰ نانومتری طلا-آلومینا.



شکل ۴: افزایش نرخ گذار خودبخودی تابشگر در مجاورت افزاره فراماده (مشکی)، به تفکیک افزایش نرخ گذار تابشی (آبی) و غیرتابشی (قرمز).

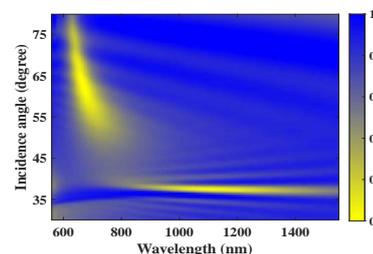
بهره کوانتومی در افزایش نرخ گذار تابشی

افزایش نرخ گذار خودبخودی تابشگر کوانتومی Γ ، که بیانگر مجموع نرخ گذارهای تابشی و غیرتابشی است با فاکتور زیر محاسبه می‌شود، به طوری که ρ_0 چگالی

دلیل خواص فیزیکی منحصر به فرد به سرعت توجه زیادی به خود جلب کردند. این نوع از فرامواد که از فلز و دی-الکتریک تشکیل می‌شوند (در مقایسه با مواد معمول با صفحات پاشندگی به شکل کروی و یا بیضوی) صفحات پاشندگی به شکل هذلولی دارند [7]. در میان مواد مختلف، طلا و آلومینا پرکاربردترین موادی هستند که در ساختارهای متناوب چندلایه‌ای، می‌توانند فرامواد هذلولوی نوع دوم در بازه طول موجی مرئی ایجاد کنند [1]. تعداد لایه‌ها بیشتر ویژگی‌های ساختار هذلولوی را بهتر نمایان می‌کند؛ از طرفی به دلیل محدودیت‌های ساخت، از دیدگاه تجربی ساختارهایی با تعداد لایه‌های زیاد مطلوب نیست. در نتیجه در این مقاله ساختاری با ۶ لایه متناوب طلا و آلومینا برای بررسی در نظر گرفته شده است.

نتایج و بحث

برای بررسی افزاره مورد نظر، ابتدا مد هذلولوی ساختار با استفاده از شبیه سازی FDTD و محاسبه طیف بازتابی مورد مطالعه قرار گرفته است. شکل ۲، مد هذلولوی افزاره فراماده را در بازه طول موجی ۱۵۰-۵۵۰ نانومتر و در زاویه فرود ۳۰-۸۰ درجه نمایش می‌دهد که در طول موج‌های بزرگتر از ۸۰۰ نانومتر به صورت پهن باند، غیرتشدید و با اتلاف کم دیده می‌شود (پهنای مد معرف اتلاف می‌باشد).



شکل ۲: مد هذلولوی افزاره فراماده چندلایه‌ای؛ غیرتشدید و پهن باند در طول موج‌های بزرگتر از ۸۰۰ نانومتر.

چگالی حالت‌های فوتونی

چگالی حالت‌های فوتونی مانند چگالی حالت‌های الکترونی، در قلب بسیاری از پدیده‌های فیزیکی قرار دارد و تغییرات

نتیجه گیری

در این پژوهش با استفاده از شبیه سازی FDTD و محاسبات تابع گرین، چگالی حالت های فوتونی موضعی برای افزاره فراماده هذلولوی محاسبه و افزایش نرخ گذار خودبخودی از مسیرهای تابشی و غیر تابشی مورد بررسی قرار گرفته است. نتایج بدست آمده افزایش قابل توجه تابش فلورسانس (گذار تابشی) برای تابشگری که در مجاورت افزاره فراماده قرار دارد را به دلیل مد پهن باند هذلولوی نشان می دهد.

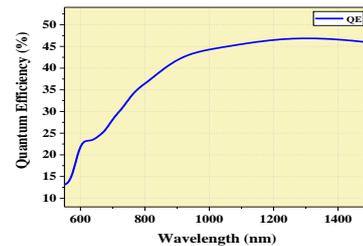
مرجع ها

- [1] P. Shekhar, J. Atkinson, and Z. Jacob, "Hyperbolic metamaterials: fundamentals and applications," *Nano Converg.*, vol. 1, no. 1, p. 14, 2014.
- [2] M. A. Baqir, A. Farmani, T. Fatima, M. R. Raza, S. F. Shaukat, and A. Mir, "Nanoscale , tunable , and highly sensitive biosensor utilizing hyperbolic metamaterials in the near-infrared range," *Appl. Opt.*, vol. 57, no. 31, pp. 9447-9454, 2018.
- [3] T. Repän, A. V Lavrinenko, and S. V Zhukovsky, "Dark-field hyperlens: Super-resolution imaging of weakly scattering objects," *Opt. Express*, vol. 23, no. 19, p. 25350, 2015.
- [4] D. Lu, J. J. Kan, E. E. Fullerton, and Z. Liu, "Enhancing spontaneous emission rates of molecules using nanopatterned multilayer hyperbolic metamaterials," *Nat. Nanotechnol.*, vol. 9, pp. 48-53, 2014.
- [5] C. Sauvan, J. P. Hugonin, I. S. Maksymov, and P. Lalanne, "Theory of the spontaneous optical emission of nanosize photonic and plasmon resonators," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 110, no. 23, pp. 1-5, 2013.
- [6] K. Kuroda, T. Sawada, T. Kuroda, K. Watanabe, and K. Sakoda, "Doubly enhanced spontaneous emission due to increased photon density of states at photonic band edge frequencies," *Opt. Express*, vol. 17, no. 15, p. 13168, 2009.
- [7] A. I. Fernández-domínguez, F. J. García-vidal, and L. Martín-moreno, "Unrelenting plasmons," *Nat. Photonics*, vol. 11, no. 1, pp. 8-10, 2017.
- [8] L. Novotny and B. Hecht, *Principles of Nano-Optics*. Cambridge university Press, 2006.

حالت های فضای آزاد و Γ_0 نرخ گذار خودبخودی تابشگر در فضای آزاد است.

$$EF = \frac{\Gamma}{\Gamma_0} = \frac{\rho}{\rho_0} \quad (3)$$

فاکتور افزایش نرخ گذار برای دو قطبی در مجاورت افزاره هذلولوی با نمودار مشکلی رنگ در شکل ۴، دیده می شود.



شکل ۵: بهره کوانتومی برای تابشگر مجاور افزاره فراماده

استفاده از شبیه سازی FDTD، این فاکتور افزایش در میدان نزدیک (مجموع گذارهای تابشی و غیرتابشی) و میدان دور^۴ تابشگر (گذار تابشی) محاسبه شده و به صورت تفکیک شده در شکل ۴، گذار تابشی و غیرتابشی به ترتیب به رنگ قرمز و آبی نشان داده شده است. در طول موج های بزرگتر از ۸۰۰ نانومتر (مد پهن باند و کم اتلاف هذلولوی) گذارهای غیرتابشی به حداقل رسیده و گذار تابشی با فاکتور افزایش ۱۰ برابر دیده می شود. بهره کوانتومی^۵ معیاری از شدت فلورسانس است، که به رقابت بین مسیرهای تابشی و غیرتابشی برای گذار یک تابشگر پرداخته و با رابطه زیر بیان می شود [1]. شکل ۵ بهره کوانتومی نزدیک به ۵۰٪ برای مد

$$\Phi = \frac{\Gamma_r}{\Gamma_r + \Gamma_{nr}} \quad (4)$$

پهن باند هذلولوی را نشان داده که در مقایسه با روش های مبتنی بر تشدید، رقم قابل توجهی است.

⁴ Near and Far field

⁵ Quantum Efficiency