بیست و ششمین کنفرانس اپتیک و
فوتونیک ایران و دوازدهمین کنفرانس
مهندسی و فناوری فوتونیک ایران،
دانشگاه خوارزمی،
تهران، ایران.
۱۶-۱۵ بهمن ۱۳۹۸

جفت شدگی قوی پلاسمون اکسایتون در ساختار هیبریدی
Au nanodisk @ J-aggregate Layer

طیبه مهین روستا، سیده مهری حمیدی

آزمایشگاه مگنتوپلاسمونیک، پژوهشکده لیزر و پلاسما، دانشگاه شهید بهشتی، تهران

چکیده - جفت‌شدگی پلاسمون اکسایتون یا به عبارتی تبادل انرژی همدوس میان دو مد پلاسمونی و اکسایتونی باعث ایجاد دو مد هیبریدی بنام پلکسیتون می‌گردد. در این مقاله به بررسی برهمکنش بین پلاسمون-اکسایتون در نانو ساختار هیبریدی متشکل از Au nanodisk@J-aggregate layer **پرداخته شده است. به کمک روش تفاضل متناهی در حوزه زمان طیف جذب ساختار به ازای تغییرات ضخامت لایه اکسایتونی از ۱۰ تا ۱۴۰ نانومتر شبیه سازی شده است. به طوری که در ساختار پیشنهادی مقدار شکافتگی رابی۱۱۲/۲ میلی الکترون ولت بدست آمده است که با توجه به میرایی مدهای غیر هیبریدی، شرط رژیم جفت شدگی قوی را برآورده ساخته است.**

کلید واژه- پلکسیتونیک، جفت شدگی قوی، شکافتگی رابی ، مولکول‌های تجمع یافته‌ی J

Strong Plasmon-Exciton Coupling in Au nanodisk @ J-aggregate Layer structure

Tayyebeh Mahinroosta and Seyedeh Mehri Hamidi

Laser and Plasma research institute, **S**hahid Beheshti University, Tehran, Iran.

Abstract- The plasmon-exciton coupling, termed as the coherent energy exchange between the plasmonic and exciton modes, creates two hybrid modes called plexciton. In this paper, we investigate the plasmon-exciton interaction in a hybrid nanostructure composed of Au nanodisk @ J-aggregate layer. The absorption spectra of the structure were simulated for the thickness variations of the excitonic layer from 10 to 140 nm using the FDTD method. The proposed structure yields a Rabi splitting value of about 112.2 mV which satisfies the condition of a strong coupling regime.

Keywords: Plexcitonic, J-aggregate, strong coupling regime, Rabi splitting

این مقاله درصورتی دارای اعتبار است که در سایت www.opsi.ir قابل دسترسی باشد.

[Downloaded from opsi.ir on 2025-07-15]

مقدمه

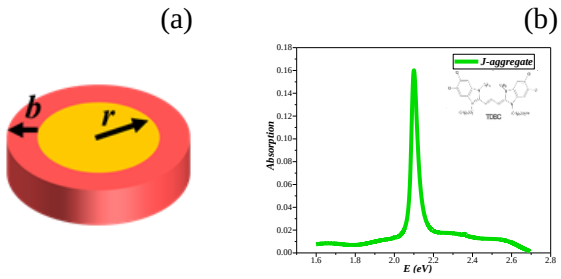
در چند دهه اخیر، جفت‌شدگی قوی بین مد پلاسمونی و اکسایتونی بدلیل رفتار اپتیکی متمایز حاصل شده‌ی مد هیبریدی نسبت به گونه های غیرهیبریدی، مورد توجه قرار گرفته است. از طریق برهمکنش پلاسمون-اکسایتون انرژی می‌تواند مسافتی بیش از صدها نانو متر منتقل شود که باعث افزایش طول انتشار می‌گردد. پلکسیتون‌ها به دلیل بوجود آوردن خواص اپتیکی مناسب منجر به کاربردهای بالقوه ای در حسگری، طیف سنجی، سلول‌های خورشیدی، لیزینگ، کاتالیزگری و ... گردیده‌اند [1]. ساختارهای پلاسمونیکی متنوعی از جمله فیلم‌های فلزی[۲]، آرایه‌هایی متشکل از نانو شکاف‌ها[۳]، نانو میله‌ها[۴]، نانو دیسک‌ها[۵]، نانوذرات کروی[۶]، ستاره‌ای[۷]، نانومنشورها[۸]، نانوذرات هسته-پوسته[۹] و... به‌علت توانمندی آن‌ها به تمرکز و به دام‌اندازی نور در نواحی با ابعاد به مراتب کمتر از طول‌موج، دستگاه‌های خوبی به این منظور بشمار می‌آیند[۱۰].

از سوی دیگر، دستیابی به رژیم جفت‌شدگی قوی با انواع گسیلنده‌ها از جمله J-aggregateها، مولکول‌های رنگدانه، مولکول‌های فوتوکرومیک[۱۱]، نقاط کوانتومی[۱۲]، چاه-های کوانتومی و نانوسیم‌ها امکان پذیر است. اما بعلت سهولت بکارگیری، قدرت نوسانگری بالا و خط جذبی باریک، J-aggregateها بعنوان ماده اکسایتونی مورد توجه بسیاری قرار گرفته‌اند[۸].

وقتی نوسان انتقال انرژی بین پلاسمون و اکسایتون، سریع‌تر از سرعت نسبی زوال هر یک از آن‌ها باشد، خصوصیات منفرد هر کدام از بین می‌رود و اکسایتون‌ها و پلاسمون‌ها به هم ملحق می‌شوند تا شبه ذره‌ی جدیدی بنام پلکسیتون بسازند. پلکسیتون‌ها مودهای پلاریتونی جدیدی هستند که از جفت-شدگی قوی بین پلاسمون‌ها و اکسایتون‌ها حاصل شده‌اند.

معرفی ساختار و شبیه سازی

هندسه‌ی نانوساختار هیبریدی پیشنهادی متشکل از یک نانودیسک طلا به عنوان محیط پلاسمونی و نانو حلقه‌ی حاوی مولکول‌های تجمع یافته TDBC بعنوان محیط اکسایتونی و همچنین طیف جذب مولکول‌های تجمع یافته J در شکل ۱ نمایش داده شده است. ماده‌ی اکسایتونی دارای انرژی و نرخ میرایی به ترتیب 2.1eV و 36meV می‌باشد. به منظور بررسی برهم‌کنش پلاسمون-اکسایتون، شبیه سازی ساختار با استفاده از روش تفاضل محدود در حوزه زمان (FDTD) که یکی از رایج ترین ابزارهای تحلیلی است، انجام گرفته است. در این راستا با انجام بهینه سازی در نرم افزار لومریکال، پارامترهای هندسی ساختار از جمله شعاع نانودیسک طلا و ضخامت لایه‌ی اکسایتونی به صورت r=70nm و b=70nm و H=50nm انتخاب گردید. در تمام شبیه سازی‌ها تحریک ساختار به وسیله منبع موج تخت با بازه طول موجی ۴۶۰ تا ۷۷۵ نانومتر تحت تابش عمود انجام گرفته است. شرایط مرزی PML و مش بندی ۱نانومتر در هر سه راستای x, y و z بکاررفته است.



شکل ۱: (a) شمای ساختار هیبرید، (b) طیف جذب لایه‌ی مولکول تجمع یافته‌ی TDBC [۱۳]

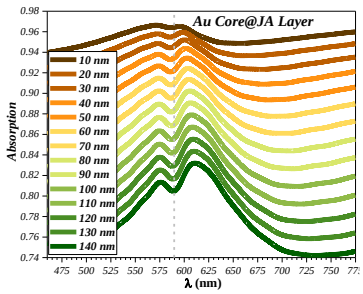
نتایج

نمودار طیف جذب ساختار هیبریدی به ازای تغییر ضخامت لایه اکسایتونی از 10 nm تا 140nm در شکل ۲ نمایش داده شده است. در این شبیه سازی ها شعاع و ضخامت هسته‌ی طلا r=H=70 nm ثابت فرض شده است. یکی از نشانه‌های بارز نزدیک شدن به رژیم جفت شدگی قوی، مشاهده‌ی رفتار پادگذر در طیف پاشندگی می‌باشد (شکل ۳). در رژیم جفت شدگی قوی مد پلاسمونی و مد اکسایتونی هیچگاه در تشدید با یکدیگر قرار نخواهندگرفت. از این پدیده به عنوان رفتار پادگذر (*Anti-crossing behaviour*) نام برده می‌شود و در

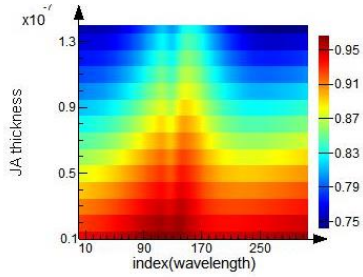
این مقاله درصورتی دارای اعتبار است که در سایت www.opsi.ir قابل دسترسی باشد.

[Downloaded from opsi.ir on 2025-07-15]

نتیجه مابین آن‌ها اختلاف یا به تعبیری شکاف به‌وجود می‌آید که هر چه ثابت جفت شدگی قوی تر باشد، شکاف بزرگتر می‌شود. جهت ورود به رژیم تزویج قوی با افزایش میدان الکتریکی ناشی از موج الکترومغناطیس و یا بکارگیری سیستم کوانتومی با ساختاری که دارای ممان دوقطبی بالاتری باشد، می‌توان بسامد رابی را افزایش داد.



شکل ۲: نمودار طیف جذب ساختار Au nanodisk @ JA layer به ازای تغییرات ضخامت لایه اکسایتونی



شکل ۳: منحنی پاشندگی ساختار نانودیسک طلا@ لایه *j-aggregate* به ازای تغییرات لایه مولکولی

مقدار انرژی شکافتگی رابی (*Rabi Splitting*) بین شاخه‌های پلکسیتونی قدرت جفت‌شدگی را بیان می‌کند. مقدار انرژی شکافتگی رابی ($\hbar\Omega$) به صورت زیر تعریف می‌شود:

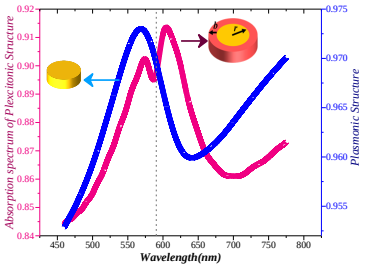
$$\hbar\Omega = \omega_+ - \omega_- = \sqrt{\frac{N}{V}\frac{e^2}{\varepsilon_0 m}} \qquad (1)$$

که در آن ω_+ ، ω_-، N، V، e ، ε_0 و m به ترتیب فرکانس مدهای هیبریدی پلکسیتونی، تعداد ذرات، حجم مدی، بار الکترون، ثابت گذردهی خلاء و جرم الکترون می‌باشند. همچنین با توجه به مدل جمیز کامینگز در مدل کوانتومی، مقادیر انرژی مدهای هیبریدی به شرح زیر است[۱]:

$$\begin{bmatrix} E_P(\omega)-i\frac{\Gamma_P}{2} & \sqrt{g^2+i\Delta\frac{\Gamma_P-\Gamma_X}{2}} \\ \sqrt{g^2+i\Delta\frac{\Gamma_P-\Gamma_X}{2}} & E_X(\omega)-i\frac{\Gamma_X}{2} \end{bmatrix}\begin{bmatrix}\alpha\\ \beta\end{bmatrix} = E_\pm \begin{bmatrix}\alpha\\ \beta\end{bmatrix} \qquad (۲)$$

$$E_\pm = E_X + \frac{\Delta}{2} \pm \frac{1}{2}\sqrt{4g^2+\left(\Delta+i\frac{\Gamma_P-\Gamma_X}{2}\right)^2} - i\frac{\Gamma_P+\Gamma_X}{4} \qquad (۳)$$

برای نمونه، نمودار شبیه سازی طیف جذب به ازای حالت b=70nm برای یک نانودیسک طلا و ساختار هیبریدی ترسیم و مقادیر انرژی هیبریدی ($E_\pm$) بدست آمده است. شکافتگی مدهای هیبریدی در سیستم پلکسیتونی در شکل ۴ مشهود است، مقدار شکافتگی رابی در این ضخامت خاص، مقداری برابر 110meV دارا است.



شکل ۴: نمودار طیف جذب سیستم پلاسمونی (منحنی آبی رنگ) و سیستم پلکسیتونی (منحنی صورتی رنگ) به ازای b=70 nm

با توجه به طول‌موج‌های هیبریدی (λ_{min} و λ_{max}) بدست آمده از نتایج شبیه سازی در شکل ۲، انرژی‌های مدهای پلکسیتونی (E_{max} و E_{min}) با استفاده از معادله‌ی (۳) محاسبه گردیده است. همچنین مقادیر شکافتگی انرژی رابی به ازای سه ضخامت مختلفی از لایه‌ی اکسایتونی ($b = 20, 70, 140\ nm$) جدول ۱ خلاصه شده است.

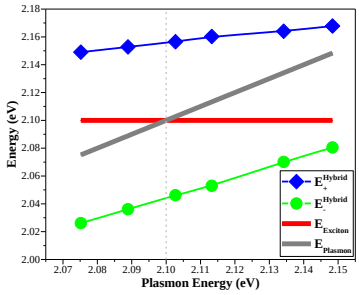
جدول ۱: طول موج، انرژی مدهای هیبریدی و شکافتگی رابی

	b=20	b=70	b=140
$\lambda_{min}(nm)$	572.9	573.9	576
$\lambda_{max}(nm)$	598.9	604.9	611
$E_{max}(eV)$	2.16405	2.16028	2.15278
$E_{min}(eV)$	2.07012	2.04959	2.02946
$RS\ (meV)$	94	110.6	123.3

با توجه به داده‌های منحنی جذب شکل۲ و مقادیر انرژی مدهای پلاسمونی و اکسایتونی غیر هیبریدی، رفتار پادگذر مدهای پلکسیتونی در نمودار انرژی‌های مدهای هیبریدی و غیر هیبریدی در شکل ۵ مشاهده می‌گردد. منحنی آبی و سبز نشان‌دهنده‌ی مدهای هیبریدی و منحنی قرمز و طوسی رنگ نمایانگر انرژی مد اکسایتونی و پلاسمونی غیر هیبریدی می‌باشند.

این مقاله درصورتی دارای اعتبار است که در سایت www.opsi.ir قابل دسترسی باشد.

[Downloaded from opsi.ir on 2025-07-15]



شکل ۵: تغییرات انرژی مدهای هیبریدی (منحنی آبی و سبز رنگ) به ازای تغییر انرژی پلاسمونی. منحنی قرمز و طوسی نشانگر انرژی مد-های غیر هیبریدی اکسایتونی و پلاسمونی می‌باشد.

نتیجه گیری

در این کار جفت شدگی پلاسمون_اکسایتون در ساختار هیبریدی متشکل از نانودیسک طلا @ لایه JA پیشنهادی در ضخامت های مختلف مورد بررسی قرار گرفت. طیف‌های جذب ساختار به ازای ضخامت‌های مختلفی از لایه اکسایتونی با استفاده از روش FDTD شبیه سازی گردید و شکافتگی انرژی رابی به ازای همه‌ی ضخامت‌ها مشاهده گردید. بعنوان مثال، به ازای ضخامت ۷۰ نانومتری لایه اکسایتونی، انرژی مدهای هیبریدی به ترتیب برابر $\boldsymbol{E_{max}} = 2.16\ eV$ و $\boldsymbol{E_{min}} = 2.049\ eV$ حاصل گردید. که مقدار شکافتگی رابی برای این حالت برابر $\hbar\Omega = 110.6\ meV$ است. مشاهده شدن رفتار پاد گذر در منحنی پاشندگی نشانه‌ی نزدیک شدن یا وارد شدن به رژیم جفت شدگی قوی می‌باشد. از آنجا که شرط جفت شدگی قوی در حالتی که میرایی مد پلاسمونی نسبت به انرژی آن غیر قابل چشم پوشی باشد، $\hbar\Omega \geq \frac{\Gamma_P - \Gamma_X}{4}$ می‌باشد. در ساختار پیشنهادی، در حالت تشدید $(\Delta = 0)$ این شرط جفت شدگی قوی برقرار بوده و مقداری برابر $\hbar\Omega(\Delta = 0) = 110.6\ meV$ داراست.

مراجع:

[1] Törmä, P. and W.L. Barnes, Strong coupling between surface plasmon polaritons and emitters: a review. Reports on Progress in Physics, 2014. 78(1): p. 013901.

[2] Hertzog, M., et al., Strong light–matter interactions: a new direction within chemistry. Chemical Society Reviews, 2019. 48(3): p. 937-961.

[3] Gupta, P.J.P., Controlling Level Splitting by Strong Coupling of Surface Plasmon Resonances with Rhodamine-6G on a Gold Grating. 2018. 13(6): p. 2067-2077.

[4] Chen, H., et al., Gold nanorods and their plasmonic properties. Chemical Society Reviews, 2013. 42(7): p. 2679-2724.

[5] Zheng, Y.B., et al., Dynamic Tuning of Plasmon–Exciton Coupling in Arrays of Nanodisk–J-aggregate Complexes. Advanced Materials, 2010. 22(32): p. 3603-3607.

[6] Fofang, N.T., et al ,Plexciton Dynamics: Exciton−Plasmon Coupling in a J-Aggregate−Au Nanoshell Complex Provides a Mechanism for Nonlinearity. Nano Letters, 2011. 11(4): p. 1556-1560.

[7] Savateeva, D., et al. Plasmon-exciton strong coupling in a hybrid system of gold nanostars and J-aggregates. in 2013 15th International Conference on Transparent Optical Networks (ICTON). 2013.

[8] Das, K., B. Hazra, and M. Chandra. Plasmon-exciton coupling in hollow gold nanoprisms −J-aggregate hybrids. in 13th International Conference on Fiber Optics and Photonics. 2016. Kanpur: Optical Society of America.

[9] De Luca, A., et al., Plasmon mediated super-absorber flexible nanocomposites for metamaterials. Nanoscale, 2013. 5(13): p. 6097-6105.

[10] Zheng, Y.B., et al., Exciton–Plasmon Coupling: Dynamic Tuning of Plasmon–Exciton Coupling in Arrays of Nanodisk–J-aggregate Complexes (Adv. Mater. 32/2010). 2010. 22.

[11] Nan, F., et al., Plasmon resonance energy transfer and plexcitonic solar cell. Nanoscale, 2016. 8(32): p. 15071-15078.

[12] Ghosh, P., et al., *Localized surface plasmon and exciton interaction in silver-coated* cadmium sulphide quantum dots. 2015. 1661(1): p. 100004.

[13] Wang, S., *Strong light-molecule coupling: routes to new hybrid materials*. 2015, Université de Strasbourg

این مقاله درصورتی دارای اعتبار است که در سایت www.opsi.ir قابل دسترسی باشد.

[Downloaded from opsi.ir on 2025-07-15]