بیستمین کنفرانس اپتیک و فوتونیک ایران
و ششمین کنفرانس مهندسی و فناوری فوتونیک ایران
۸ تا ۱۰ بهمن ماه۱۳۹۲ - دانشگاه صنعتی شیراز

مدهای تشدیدی پلاسمون‌های سطحی جایگزیده در نانوذرات بیضوی نقره

وحید فلاحی و علی خالدی‌نسب

دانشکده فیزیک و مهندسی اپتیک و لیزر، دانشگاه بناب، ۵۵۵۱۷۶۱۱۶۷، بناب، ایران

چکیده – ضریب خاموشی نانوذرات نقره (*Ag*) با هندسه بیضی‌گون با استفاده از روش تفاضل متناهی در حوزهٔ زمان در نرم‌افزار *CST Microwave Studio* مدل‌سازی شده است. فرکانس تشدیدی پلاسمون‌های سطحی جایگزیده شدیداً به هندسه و جهت‌گیری نانوذرات بستگی دارد. برای نانوذره‌ای با هندسهٔ بیضی‌گون دوکی- شکل مدهای طولی، عرضی و هیبریدی محاسبه شده است. مد تشدیدی طولی زمانی رخ می‌دهد که میدان الکتریکی تابش فرودی در راستای محور بزرگ بیضی‌گون قرار گیرد. به طور مشابه، مد تشدیدی عرضی نیز در حالتی اتفاق می‌افتد که میدان الکتریکی تابشی در جهت عمود بر راستای محور بزرگ بیضی‌گون قرار گیرد. در محاسبات انجام شده، از تابع دی‌الکتریک بدست آمده توسط مدل درود- سامرفیلد استفاده شده است.

کلید واژه- سطح مقطع خاموشی، نظریهٔ پراکندگی Mie، پلاسمون‌های سطحی جایگزیده، روش تفاضل متناهی در حوزهٔ زمان

Localized Surface Plasmon Resonances of Silver Ellipsoidal Nanoparticles

Ali Khaledi-Nasab and Vahid Fallahi

Department of Physics & Optics and Laser Engineering, University of Bonab, 5551761167 Bonab, Iran

Abstract- The finite difference time domain method (FDTD) has been used to model the extinction cross section of silver (Ag) ellipsoidal nanoparticles. The localized surface Plasmon resonance frequencies strongly depend on the size and orientation of the nanoparticles. It has been calculated the longitudinal, transverse and hybrid modes for nanoparticles with prolate spheroid geometry. The longitudinal resonance mode occurs when the electric field of incident light is along the c-axis of the prolate spheroid. Similarly, the transverse resonance mode occurs when the electric field of incident light is perpendicular to the c-axis. In our calculations, the dielectric function has been obtained according to the Drude-Sommerfeld theory.

Keywords: Extinction cross section, Mie Scattering theory, Localized surface Plasmon, Finite difference time domain.

[Downloaded from www.opsi.ir on 2025-07-28]

۱- مقدمه

نانوذرات فلزی می‌توانند خواص نوری ماده را در ابعاد نانومتری تحت تأثیر قرار دهند [۳-۱]. رهیافتی که برای توضیح این اثر وجود دارد، بر اساس پدیدهٔ پلاسمونیک (نوسانات جمعی الکترون‌های رسانش) بنا شده است [۴]. پلاسمون‌ها دارای مدهای تشدیدی هستند که به شکل و اندازهٔ نانوذرات بستگی دارند. رفتار تشدیدی پلاسمون‌ها بدلیل محبوس بودن الکترون‌های رسانش در داخل نانوذرات فلزی است و در اثر این محدودشدگی، یک جابجایی الکترومغناطیسی القایی می‌تواند پولاریزاسیون سطحی ایجاد کند. بدلیل قطبش‌پذیری قوی نانوذرات در حالت تشدید پلاسمونی، انرژی موج الکترومغناطیسی فرودی جذب پلاسمون شده و باعث افزایش میدان موضعی در حجم نانوذره خواهد شد. مقداری از انرژی بدست آمده توسط پلاسمون در فلز تلف شده و بقیهٔ آن تابش می‌کند.

بررسی و مطالعات کمّی خواص اپتیکی غیرعادی فلزات در شروع قرن بیستم میلادی رونق گرفت. نزدیک به شروع قرن بیستم، لرد رایلی دلیل آبی بودن آسمان را با استخراج رابطه‌ای ساده برای توان پراکنش نور از یک کره‌ای با ابعادی بسیار کوچکتر از طول موج نور تابشی، توضیح داد [۵]. گارنت در سال ۱۹۰۴ میلادی، درخشش رنگ‌ها در شیشه فلزی را به کمک مدل درود [۶] که خواص اپتیکی فلزات دارای الکترون آزاد را توضیح می‌دهد، بیان کرد [۷]. مدت کوتاهی پس از آن، گوستاو مای در سال ۱۹۰۸ میلادی فرمول‌بندی کلی را برای پراکندگی نور از سطوح کروی شامل نانوذرات کلوئیدی طلا با اندازه‌های متفاوت ارائه داد [۸]. وی چگونگی تشکیل مدهای سطحی الکترومغناطیسی را برای یک نانوکره فلزی نشان داد و ثابت کرد که تشدید فرکانسی در ناحیهٔ مرئی که همان تشدید پلاسمون‌های سطحی جایگزیده (LSPR) است، به دلیل اثرات جمعی الکترون‌های آزاد در فلزات بوده و به جنس، اندازه و شکل ماده و همچنین محیط اطراف آن بستگی دارد [۱۰،۹].

نانوذرات کروی به دلیل تقارن‌شان تنها یک مد تشدیدی از خود نشان می‌دهند. اما نانوذراتی با هندسهٔ بیضی‌گون که دارای سه محور تقارنی هستند، بیشتر از یک مد تشدیدی داشته که شامل یک مد طولی و دو مد عرضی است [۱۱]. نوسان ابر الکترونی نسبت به هسته مثبت در راستای هر یک از محورهای بیضی‌گون منجر به تشکیل چنین مدهای طولی و عرضی می‌شود. همچنین سمت‌گیری مختلف هر یک از محورهای بیضی‌گون با راستای میدان تابشی می‌تواند قله تشدیدی پلاسمون‌های سطحی جایگزیده را جابجا کند. بررسی چنین تحلیلی نیاز به حل عددی داشته که روش‌های متفاوتی از قبیل تفاضل متناهی در حوزهٔ زمانی (FDTD) [۱۲]، تقریب دوقطبی گسسته (DDA) [۱۳]، تقریب چندقطبی چندگانه (MMA) [۱۴]، و روش تبدیل فوریهٔ مزدوج گرادیان (CG-FFT) [۱۵] برای آن پیشنهاد می‌شود.

در مقاله حاضر، ما با استفاده از نرم‌افزار CST Microwave Studio که بر پایهٔ الگوریتم تفاضل متناهی در حوزهٔ زمان بنا شده است، خواص اپتیکی و مدهای تشدیدی بیضی‌گون کشیده را بررسی می‌کنیم.

۲- مدل‌سازی و مبانی نظری

نظریه Mie بیانگر این موضوع است که اندازه ذرات تعیین کننده رنگ آنها است. به عبارت دیگر، ذرات با ابعاد و هندسه‌های مختلف در طول موج‌های خاصی رفتار تشدیدی از خود نشان می‌دهند و سطح مقطع خاموشی آنها (مجموع سطح مقطع‌های جذب، پراکندگی) تابعی از طول موج تابشی خواهد بود.

با فرض تابش فرودی با قطبش خطی در امتداد محور z، سطح مقطع خاموشی برای یک کره دی‌الکتریک با ضریب شکست n واقع در محیط خلاء به صورت زیر تعیین می‌شود:

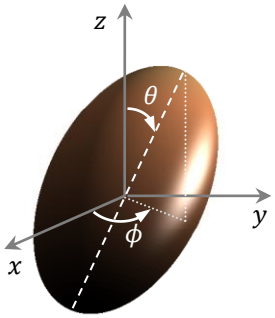
$$s_{ext} = \frac{2p}{k^2} \sum_{l=1}^{\infty} (2l+1)\,\mathrm{Re}\,(a_l + b_l), \qquad (۱)$$

که در آن a_l و b_l ضرایب امواج پراکنده شده هستند:

$$a_l = \frac{y_l'(y)\,y_l(x) - n\,y_l(y)\,y_l'(x)}{y_l'(y)\,x_l(x) - n\,y_l(y)\,x_l'(x)}, \qquad (۲)$$

$$b_l = \frac{n\,y_l'(y)\,y_l(x) - y_l(y)\,y_l'(x)}{n\,y_l'(y)\,x_l(x) - y_l(y)\,x_l'(x)}, \qquad (۳)$$

[Downloaded from www.opsi.ir on 2025-07-28]



شکل ۱: بیضیگون کشیده با مشخصهٔ $a = b < c$ و جهت‌گیری محور بزرگ آن نسبت به محورهای x و z.

که در آن $x = ka$ و $y = nx$ بوده و توابع $y_l(r)$ و $x_l(r)$ به ترتیب توابع بسل و هانکل مرتبهٔ دوم هستند که به صورت زیر نوشته می‌شوند:

$$y_l(r) = \sqrt{\frac{pr}{2}}\, J_{l+\frac{1}{2}}(r)\,, \qquad (۴)$$

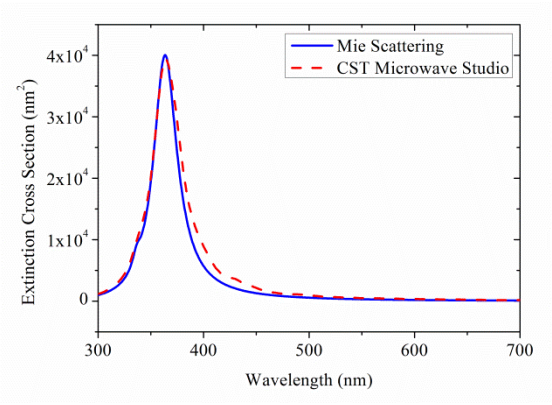
$$x_l(r) = \sqrt{\frac{pr}{2}}\, H^{(2)}_{l+\frac{1}{2}}(r)\,. \qquad (۵)$$

نظریه پراکندگی Mie، یک روش تحلیلی است که برای ساختارهایی با هندسهٔ کروی بکار برده می‌شود. معهذا، برای بررسی و تحلیل ساختارهای غیرکروی، بایستی از یکی از روش‌های عددی مذکور در مقدمه استفاده کنیم. روش تفاضل متناهی در حوزه زمانی یکی از قدرتمندترین روش‌های شبیه‌سازی است که اولین بار برای امواج میکروویو و سپس در محدودهٔ فرکانس مرئی برای ساختارهایی با هندسه نامنظم از آن استفاده شد.

مدل در نظر گرفته شده برای شبیه‌سازی، یک بیضی‌گون کشیده (دوک مانند) با مشخصهٔ $a = b < c$ با زاویهٔ قطبی q و جهت‌گیری سمتی f برای محور بزرگ آن است (شکل ۱ را ببینید). راستای میدان الکتریکی برای تابش فرودی در راستای محور x بوده و جهت انتشار آن به موازات محور z در نظر گرفته شده است.

۳- نتایج شبیه‌سازی

تابع دی‌الکتریک فلزات در چارچوب نظریه درود-سامرفیلد تعیین می‌شود. در این نظریه، گاز الکترونی آزاد در تعیین خواص اپتیکی فلزات نقش ایفا می‌کنند. این الکترون‌ها به طور آزادانه در بین دو مرکز پراکنده‌ساز (یون‌های شبکه، فونون‌ها، ناخالصی‌ها و...) حرکت می‌کنند



شکل ۲: مقایسه سطح مقطع خاموشی بدست آمده از طریق نظریه پراکندگی Mie و نرم‌افزار شبیه‌سازی CST برای نانوذرهٔ کروی از جنس نقره به شعاع 30 nm.

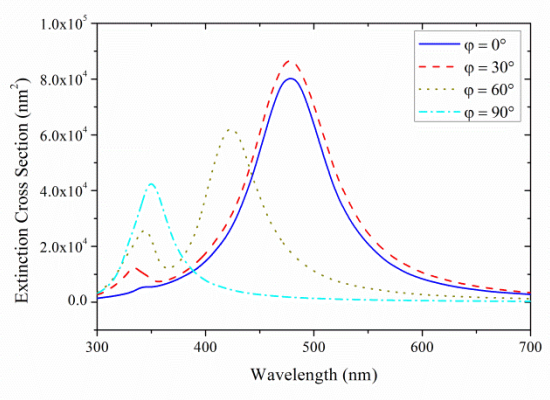
و با نرخ متوسط $g_0 = t^{-1}$ (t زمان میانگین بین دو برخورد متوالی است) واهلش می‌یابند. هر گونه برخوردی منجر به از دست دادن اطلاعات مربوط به جهت حرکت الکترون شده و باعث کاتوره‌ای شدن جهت‌مندی سرعت الکترون می‌شود. حضور میدان‌های خارجی، باعث شتاب گرفتن الکترون‌ها در بین دو پراکندگی شده و منجر به حرکت سوق الکترون‌ها می‌شود. لازم به ذکر است که تنها الکترون‌هایی که در نزدیکی تراز فرمی قرار دارند، می‌توانند در ترابرد شرکت کنند، زیرا الکترونهایی که در ترازهای زیرین قرار دارند، بنا به اصل طرد پائولی، نمی‌توانند حالت‌های خود را تغییر دهند. شکل کلی تابع دی‌الکتریک $e(w)$ در مدل درود- سامرفیلد، توسط رابطهٔ

$$e(w) = e_\infty - \frac{w_p^2}{w(w + ig_0)}, \qquad (۶)$$

مشخص می‌شود که در آن w_p فرکانس پلاسما بوده و ثابت e_∞ سهم مربوط به الکترون‌های مقید در قطبش‌پذیری را نشان می‌دهد. فرکانس پلاسما و زمان واهلش برای فلز نقره به ترتیب برابر $\hbar w_p = 9.46\,\text{eV}$ و $t = 6.37\,\text{fs}$ بوده و $e_\infty = 5.0$ است.

برای بررسی صحت شبیه‌سازی، نتایج حاصل از شبیه‌سازی توسط نرم‌افزار CST با نتایج به دست آمده از نظریه پراکندگی Mie، مقایسه شده است. همانطور که در شکل ۲ مشاهده می‌کنید، نتایج حاصل از این دو روش برای نانوذرهٔ کروی از جنس نقره به شعاع 30 nm توافق بسیار خوبی با هم دارند.

[Downloaded from www.opsi.ir on 2025-07-28]



شکل ۳: مدهای طولی ($f = 0$)، عرضی ($f = 90$) و هیبریدی ($0 < f < 90$) برانگیخته شده به ازای زاویهٔ قطبی $q = 90$ برای بیضیگونی با $c = 60$ nm و $a = b = 30$ nm.

در ادامه، به بررسی مدهای تشدیدی بیضی‌گونی با $a = b = 30$ nm و $c = 60$ nm نشان داده شده در شکل ۱ می‌پردازیم. منحنی سطح مقطع خاموشی به ازای $q = 90^o$ و fهای مختلف در شکل ۳ ترسیم شده است. به ازای زاویهٔ $f = 0^o$، محور بزرگ بیضی‌گون در راستای میدان الکتریکی قرار گرفته و پلاسمون‌های سطحی جایگزیده در مد طولی برانگیخته می‌شوند. با افزایش زاویه f، مدهای عرضی نیز به تدریج برانگیخته شده، مدهای تشدیدی هیبریدی در نانوذره شکل می‌گیرد، به طوریکه در زاویهٔ $f = 90^o$ تنها مد تشدیدی عرضی برانگیخته می‌شود. همانطور که در شکل به وضوح می‌توان دید، مد تشدیدی طولی به دلیل فاصله زیاد بین بارهای القاء شده، در طول موجهای بلند برانگیخته می‌شوند. با افزایش زاویه f، قله فرکانس تشدیدی مد هیبریدی به سمت طول موجهای کوتاه جابجا شده، به طوریکه در زاویه $f = 90^o$ این مد تشدیدی کاملاً به مد تشدیدی عرضی در طول موجهای کمتر تبدیل می‌شود.

۴- نتیجه‌گیری

ضریب خاموشی نانوذرات نقره (Ag) با هندسه بیضی‌گون با استفاده از روش تفاضل متناهی در حوزهٔ زمان بدست آمد. نشان داده شد که فرکانس تشدیدی پلاسمون‌های سطحی جایگزیده شدیداً به هندسه و جهت‌گیری نانوذرات بستگی دارد. برای نانوذره‌ای با هندسهٔ بیضی‌گون دوکی- شکل مدهای طولی، عرضی و هیبریدی تعیین شدند. ثابت شد که مد تشدیدی طولی و عرضی برای موقعی است که تابش میدان الکتریکی فرودی به ترتیب در راستای محور بزرگ بیضی‌گون و عمود بر آن باشد.

مراجع

[1] W. L. Barness, A. Dereux, and T. W. Ebbesen, *Surface Plasmon Subwavelength Optics*, Nature, vol. 424, p. 824, 2003.

[2] S. A. Maier, and H. A. Atwater, *Plasmonics: Localization and Guiding of Electromagnetic Energy in Metal/Dielectric Structures*, J. Appl. Phys., vol. 98, p. 011101, 2005.

[3] E. Ozbay, *Plasmonics: Merging Photonics and Electronics at Nanoscale Dimensions*, Science, vol. 311, 189, 2006.

[4] U. Kreibig, and M. Vollmer, *Optical Properties of Metal Clusters*, Springer, Berlin, 1995.

[5] L. Rayleigh, *On the Transmission of Light Through an Atmosphere Containing Small Particles in Suspension, and on the Origin of the Blue Sky*, Philos. Mag., vol. 47, pp. 375-384, 1899.

[6] P. Drude, *Optical Properties and the Electron Theory*, Ann. Phys., vol. 14, no. 10, pp. 936-961, 1904.

[7] J. C. M. Garnett, *Colours in Metal Glasses and in Metallic Films*, Philos. Trans. R. Soc. Lond. A, vol. 203, pp. 385-420, 1904.

[8] G. Mie, *Contributions to the Optics of Turbid Media: Particularly of Colloidal Metal Solutions*, Ann. Phys., vol. 25, no. 3, pp. 377-445, 1908.

[9] C. F. Bohren and D. R. Huffman, *Absorption and Scattering of Light by Small Particles*, New York: Wiley-VCH, 1998.

[10] U. Kreibig and M. Vollmer, *Optical Properties of Metal Clusters*, vol. 25, Berlin-Heidelberg: Springer Verlag, 1995.

[11] P. Sarkar, D. K. Bhui, H. Bar, G. P. Sahoo, S. Samanta, S. Pyne, and A. Misra, *DDA-Based Simulation of UV-vis Extinction Spectra of Ag Nanorods Synthesized, Through Seed-Mediated Growth Process*, Plasmonics, vol. 6, pp. 43–51, 2011.

[12] S. A. Maier, P. G. Kik and H. A. Atwater, *Optical Pulse Propagation in Metal Nanoparticle Chain Waveguides*, Phys. Rev. B, vol. 67, no. 5, p. 205402, 2003.

[13] T. Jensen, L. Kelly, A. Lazarides and G. C. Schatz, *Electrodynamics of Noble Metal Nanoparticles and Nanoparticle Clusters*, J. Cluster Sci., vol. 10, no. 2, pp. 295-317, 1999.

[14] E. Moreno, D. Erni, C. Hafner and R. Vahldieck, *Multiple Multipole Method with Automatic Multipole Setting Applied to the Simulation of Surface Plasmons in Metallic Nanostructures*, J. Opt. Soc. Am. A, vol. 19, no. 1, pp. 101-111, 2002.

[15] A. A. Lazarides and G. C. Schatz, *DNA-Linked Metal Nanosphere Materials: Fourier-Transform Solutions for the Optical Response*," J. Chem. Phys., vol. 112, no. 6, pp. 2987-2993, 2000.

[Downloaded from www.opsi.ir on 2025-07-28]