

# Calculation of Fluorescence Enhancement of Molecule Close to Conical Nanoantenna

Aida Firoozi, Ahmad Mohammadi\*

Department of Physics, Persian Gulf University, 75169 Bushehr, Iran

Received: 16.10.2017    Final revised: 08.04.2021    Accepted: 04.05.2019

Doi link: [10.22055/JRMBS.2021.16782](https://doi.org/10.22055/JRMBS.2021.16782)

## Abstract

Utilizing boundary element method (BEM), we investigate fluorescence rate enhancement by conical nanoantennas. The nanoantennas consist of two gold nanoparticles located along a line on both sides of the molecule. Molecular fluorescence rate can be considerably enhanced by nanoantennas. The fluorescence rate depends on the orientation, distance and position of molecule with respect to nanoantennas, as well as the effect of the incident light angle and the gap distance of the two nanoparticles. In practice, it is not easy to fix a precise position and orientation for a molecule in the vicinity of a nanoantenna. By allowing for the effect of molecule position and orientation on the emission spectra, one can achieve a better agreement between experimental results and theoretical calculations. Moreover, it provides important information to design the experimental configuration.

**Keywords:** Fluorescence Enhancement, Conical Nanoantenna, Surface Plasmon resonance

---

\*Corresponding Author: Mohammadi@pgu.ac.ir



## محاسبه افزایش نرخ فلئورسانس مولکول در کنار نانوانتن مخروطی شکل

آیدا فیروزی، احمد محمدی\*

گروه فیزیک، دانشکده علوم، دانشگاه خلیج فارس، بوشهر، ایران

دریافت: 1398/02/14 ویرایش نهائی: 1400/01/19 پذیرش: 1400/02/06

Doi link: [10.22055/JRMBS.2021.16782](https://doi.org/10.22055/JRMBS.2021.16782)

## چکیده

با به‌کارگیری روش المان مرزی به بررسی افزایش نرخ فلئورسانس به کمک نانوانتن‌های مخروطی شکل می‌پردازیم. نانوانتن مورد نظر از دو نانوذره از جنس طلا تشکیل شده است که در امتداد یک خط در دو طرف مولکول واقع شده‌اند. این نوع از نانوذرات پلاسمونیک می‌توانند نرخ فلئورسانس را به میزان قابل توجهی افزایش دهند. نرخ فلئورسانس به‌راستی قرار گرفتن گسیل‌کننده، فاصله و مکان آن نسبت به نانوانتن، راستای تابش نور فرودی و فاصله بین دو نانوذره بستگی دارد. قرار دادن مولکول در یک مکان خاص با جهت‌گیری مشخص در عمل به‌طور دقیق امکان‌پذیر نیست و با خطا همراه است. با محاسبه تغییرات ایجاد شده در طیف گسیل مولکول ناشی از جابه‌جایی مولکول نسبت به نانوانتن، می‌توان هم‌خوانی بهتری میان داده‌های آزمایشگاهی و محاسبات تئوری به دست آورد. علاوه بر این، امکان پیش‌بینی پیکربندی آزمایشگاهی مناسب برای دستیابی به نرخ مورد نظر فراهم می‌گردد.

**کلیدواژگان:** افزایش فلئورسانس، نانوانتن مخروطی شکل، پلاسمون سطحی جایگزیده

## مقدمه

استفاده قرار گیرند. به‌عنوان نمونه، نانوانتن‌های پلاسمونیک کاربردهای گوناگونی در طیف‌سنجی [1]، افزایش نرخ فلئورسانس مولکول [2-5]، ابزارهای فوتونیک برای حسگرهای زیستی و شیمیایی [6,7]، افزایش بهره سلول خورشیدی [8,9] و ... دارند.

نانوانتن‌ها عموماً از یک یا چند نانوذره پلاسمونیک با هندسه دلخواه که در فاصله چند نانومتری از مولکول قرار گرفته‌اند تشکیل می‌شوند [10]. برای ساخت چنین سامانه‌ای از مواد پلاسمونیک مانند طلا، نقره، مس و آلومینیوم استفاده می‌گردد [11]. نانوانتن‌ها در برهم‌کنش با نور فرودی، یک میدان الکترومغناطیسی

پیشرفت‌های اخیر در حوزه نانوفناوری، امکان ساخت ساختارهایی مشابه با آنتن رادیویی را به‌منظور تقویت تابش‌های الکترومغناطیس در محدوده اپتیکی فراهم نموده است. اصطلاحاً به این‌گونه از آنتن‌ها، نانوانتن<sup>1</sup> یا آنتن اپتیکی<sup>2</sup> می‌گویند. نانوانتن‌ها مبدلی هستند که به‌منظور دریافت و انتقال امواج الکترومغناطیس طراحی شده‌اند. نانوانتن‌ها می‌توانند در ساخت تجهیزات اپتیکی در ابعاد نانو و همچنین در پژوهش‌های کاربردی در شاخه‌های گوناگونی مانند نانوپلاسمونیک، نانوبیوفناوری، پزشکی و ... مورد

\* نویسنده مسئول: Mohammadi@pgu.ac.ir

<sup>1</sup> NanoAntenna<sup>2</sup> OpticalAntenna

می‌دهد این است که مولکول برانگیخته، به یکباره به تراز اولیه خود برنمی‌گردد بلکه با آمدن به ترازهای میانی، خود را کم کم به حالت پایدار اولیه نزدیک می‌کند.

توانایی کنترل گسیل خودبه‌خود به‌کمک نانواتن‌ها هم از نظر پژوهشی و هم از نظر کاربردهای عملی از اهمیت به‌سزایی برخوردار می‌باشد و تحقیقات بسیاری در این زمینه در حال انجام است. گرچه در ابتدا پدیده گسیل خودبه‌خودی را به‌عنوان یک پدیده غیر قابل کنترل می‌شناختند، اما پورسل نشان داد که امکان تغییر آن با تغییر در محیط اطراف گسیل‌کننده وجود دارد [15]. نرخ گسیل خودبه‌خودی مولکول زمانی که در نزدیک ساختار ماده قرار گرفته در مقایسه با زمانی که در فضای آزاد قرار گرفته است متفاوت می‌باشد.

سیگنال فلئورسانس ناشی از برانگیختگی و تابش یک مولکول یا اتم معمولاً بسیار ضعیف است و به‌آسانی قابل آشکارسازی نیست. یکی از راه‌های افزایش سیگنال فلئورسانس مولکول به‌کارگیری نانوذرات پلاسمونیک با هندسه بیضی‌گون [16]، نانومیله [16] و مخروطی شکل [17,18] می‌باشد. به‌کمک نانوذرات فلزی می‌توان نرخ واپاشی تابشی گسیل‌کننده‌هایی که در میدان نزدیک نانوذرات قرار گرفته‌اند را کنترل کرد [19-21]. بزرگترین برتری نانوذرات مخروطی شکل نسبت به نانومیله، بیضی‌گون و دیگر هندسه‌ها این است که می‌تواند پیک تشدید پلاسمون سطحی جایگزیده را با تغییر ابعاد نانوذره مخروطی به‌سمت ناحیه مرئی برد بدون اینکه منجر به کاهش بهره‌آنتن و نرخ واپاشی گردد [3,17]. بالا بردن احتمال برانگیختگی و گسیل

قوی در ناحیه میدان نزدیک اطراف خود ایجاد می‌کنند که اساس این فرآیند تشکیل پلاسمون سطحی جایگزیده است. هنگامی که موج الکترومغناطیس بر سطح فلزی تابیده می‌شود، میدان الکتریکی موج تابشی الکترون‌های نوار هدایت را به‌نوسان در می‌آورد. به نوسان گروهی الکترون‌های نوار هدایت، پلاسمون سطحی گفته می‌شود. زمانی که نور به نانوذره فلزی تابیده شود، پلاسمون ایجاد شده به‌دلیل محدودیت سطح و حجم نانوذره، در سطح نانوذره جایگزیده و محبوس می‌شوند و موجب تشکیل میدان الکترومغناطیس قوی در اطراف نانوذره می‌شود که به آن پلاسمون سطحی جایگزیده گفته می‌شود [12]. اگر فرکانس نور فرودی با فرکانس طبیعی این حرکت نوسانی برابر باشد، تشدید پلاسمون سطحی جایگزیده رخ می‌دهد. تشدید پلاسمون سطحی جایگزیده به پارامترهایی از قبیل هندسه [13]، ابعاد [14]، جنس نانوذره [11] و ضریب شکست محیطی که نانوذره در آن قرار گرفته است [14] بستگی دارد.

افزایش میدان نزدیک در اطراف نانوذرات، به‌دلیل پدیده تشدید، می‌تواند باعث افزایش نرخ برانگیختگی مولکول و در نتیجه افزایش فلئورسانس گردد. پدیده فلئورسانس به‌صورت کلی در دو مرحله برانگیختگی و گسیل خودبه‌خودی انجام می‌گردد. در این پدیده، مولکول با کسب انرژی تابشی، از یک تراز با انرژی کمتر، به تراز با انرژی بالاتر برانگیخته می‌شود. در حالت برانگیختگی مولکول ناپایدار است و تمایل دارد انرژی گرفته شده را با گسیل خودبه‌خودی پس داده و به‌حالت پایه بازگردد. اما اتفاقی که در فلئورسانس رخ

این مشکل استفاده از روش BOR<sup>۴</sup>-FDTD [23] می‌باشد. با بهره‌گیری از این روش ضمن کاهش فضای 3 بعدی به دو بعد، محاسبات را می‌توان بر روی کامپیوترهای معمولی نیز انجام داد. این روش محدود به مسائلی است که از تقارن دورانی برخوردار هستند و تنها زمانی این روش اعتبار دارد که مولکول در راستای محور نانوآنتن قرار بگیرد. از آنجا که در این مقاله به بررسی تأثیر مکان و جهت‌گیری‌های متفاوت مولکول می‌پردازیم، در مواردی این تقارن از بین می‌رود. بنابراین در این مقاله روش المان مرزی را به‌منظور محاسبه افزایش فلئورسانس مولکول برگزیده‌ایم. روش المان مرزی روشی نیمه‌تحلیلی است که در دامنه فرکانس عمل می‌کند و به‌منظور مطالعه برهم‌کنش نور با مواد همسانگرد و خطی به‌کار می‌رود. دلیل انتخاب این روش در مقایسه با روش‌های دیگر می‌توان به سرعت و دقت بالای آن در انجام محاسبات اشاره کرد. برای انجام محاسبات با استفاده از این روش کافی است که مرز جسم را گسسته گردد.

راه‌کار ارائه شده در این مقاله به‌منظور افزایش نرخ فلئورسانس، به‌کارگیری نانوآنتن‌ها با هندسه مخروطی شکل از جنس طلا می‌باشد. دلیل این انتخاب این است که طول‌موج تشدید نانوآنتن از جنس طلا در ناحیه مرئی قرار می‌گیرد. همچنین به‌دلیل سنتز آسان، سمیت پایین و زیست‌سازگاری بالا، نانوذرات طلا بسیار مورد استفاده قرار می‌گیرند. در این مقاله به‌کمک روش المان مرزی به بررسی تأثیر فاصله، جهت‌گیری و مکان

خودبه‌خودی هر دو باعث تقویت سیگنال فلئورسانس خواهند شد.

برای دستیابی به بالاترین میزان افزایش فلئورسانس، باید طول‌موج تشدید پلاسما مناسبت با طول‌موج جذب و گسیل فوتون توسط مولکول مورد بررسی تنظیم شود. انجام این کار مستلزم محاسبه سطح مقطع پراکندگی و نرخ گسیل خودبه‌خودی در کنار نانوذره با استفاده از حل تمام برداری معادلات ماکسول برای نانوذراتی با هندسه‌های مختلف است. از آنجا که برای چنین مسائلی حل تحلیلی وجود ندارد، از روش‌های محاسباتی گوناگون که توانایی مدل‌سازی برهم‌کنش نور با نانو ساختارهای پلاسماونیک را دارند، استفاده می‌شود. از جمله روش‌های محاسباتی مهم و پرکاربرد عبارتند از: روش تفاضل متناهی دامنه زمان<sup>1</sup> (FDTD) [22]، روش چندقطبی چندگانه<sup>2</sup> (MMP) [23]، روش المان متناهی<sup>3</sup> (FEM) [24] و روش المان مرزی<sup>4</sup> (BEM) [25].

از میان روش‌های محاسباتی، روش FDTD به‌دلیل توانایی حل معادلات ماکسول در دامنه زمان برای ساختارهای پیچیده با ابعاد و هندسه دلخواه از اهمیت ویژه‌ای برخوردار است. این روش به مطالعه برهم‌کنش نور با انواع مواد (خطی، غیرخطی، همگن، ناهمگن، همسانگرد، ناهمسانگرد و ...) می‌پردازد. اما از معایب این روش وقت‌گیر بودن آن و نیاز به استفاده از سلول‌های بسیار ریز برای به‌دست آوردن جواب‌های دقیق می‌باشد. یکی از روش‌های پیشنهادی برای حل

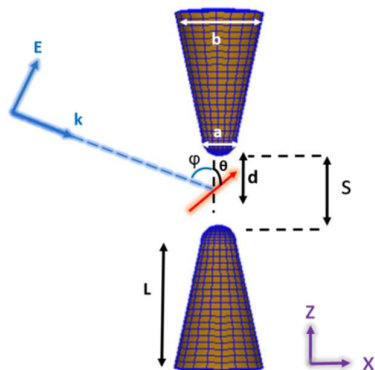
<sup>4</sup> Boundary Element Method

<sup>5</sup> Body of Revolution

<sup>1</sup> Finite Difference Time Domain

<sup>2</sup> Multiple Multipole program

<sup>3</sup> Finite Element Method



شکل 1. به کارگیری نانوآنتن متشکل از 2 نانوذره مخروطی شکل که به فاصله  $S$  از یکدیگر و مولکول در فاصله  $d$  در مرکز 2 نانوذره قرار گرفته است. قطر کوچک، قطر بزرگ و ارتفاع نانوذره را به ترتیب با  $a$ ،  $b$  و  $L$  نشان می‌دهیم. نانوآنتن تحت تابش موج تخت به منظور برانگیخته کردن مولکول قرار می‌گیرد.

برای محاسبه نرخ واپاشی تابشی، میزان تابش یک دوقطبی (معادل کلاسیکی تابش مولکول) را در نزدیکی یک آنتن اپتیکی محاسبه می‌کنیم، همان‌طور که در رابطه 3 نشان داده شده است، نرخ واپاشی تابشی به صورت نسبت توان تابشی میدان دور به توان تابشی گسیل‌کننده تعریف و از طریق رابطه 3 محاسبه می‌شود [16].

$$\frac{\Gamma_r}{\Gamma_r^0} = \frac{P_r}{P_r^0} \quad 3$$

در رابطه 3  $P_r$  توان تابشی در حضور آنتن اپتیکی و  $P_r^0$  توان تابشی گسیل‌کننده زمانی که نانوآنتن حضور ندارد.

بهره آنتن،  $\eta_a$ ، به صورت نسبت توان تابشی  $P_r$  و توان تابشی کل  $P_t$  بیان می‌شود [16] و مشخص‌کننده بخشی از انرژی کل تابش شده توسط گسیل‌کننده است که به‌خارج از مجموعه نانوآنتن-گسیل‌کننده تابش می‌کند.

مولکول بر روی نرخ گسیل و همچنین تأثیر زاویه تابش نور فرودی و فاصله دو نانوذره بر روی سطح مقطع پراکندگی می‌پردازیم. نشان می‌دهیم که با تنظیم دقیق این پارامترها می‌توان نرخ فلئورسانس را به‌طور چشمگیری افزایش داد.

### محاسبه نرخ فلئورسانس مولکول

فضای محاسباتی مورد بررسی در این مقاله در شکل 1 نشان داده شده است. نانوآنتن از دو نانوذره مخروطی شکل از جنس طلا با قطر کوچک ( $a$ )، قطر بزرگ ( $b$ ) و ارتفاع ( $L$ ) به ترتیب 20، 60 و 140 نانومتر که در فاصله ( $S$ ) 20 نانومتری از یکدیگر در محیطی به ضریب شکست 1 و تحت تابش موج تخت قرار گرفته است، تشکیل شده است. مولکول در فاصله  $d$  در مرکز نانوآنتن قرار گرفته است. برای ضریب شکست‌های نانوذرات طلا از داده آزمایشگاهی جانسون و کریستی استفاده شده است [26].

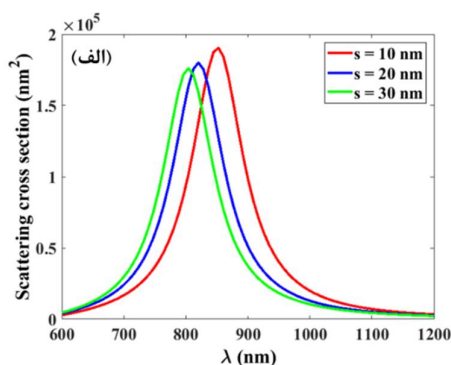
سطح مقطع پراکندگی مطابق رابطه 1، به صورت نسبت توان موج پراکنده شده  $P_s$  به شدت موج فرودی  $I_i$  تعریف می‌شود [27].

$$C_s = \frac{P_s}{I_i} \quad 1$$

در رابطه 1،  $P_s$  توان موج پراکنده شده به‌کمک رابطه 2 محاسبه می‌شود.

$$P_s = \frac{1}{2} \operatorname{Re} \left\{ \int (\mathbf{E}^s \times \mathbf{H}^{s*}) \cdot d\mathbf{a} \right\} \quad 2$$

افزایش فاصله پیک تشدید به سمت طول‌موج‌های کوتاه‌تر جابه‌جا می‌شود و همچنین کاهش سطح مقطع پراکندگی را به همراه دارد. در شکل 2ب و 2ج به ترتیب سطح مقطع جذب و سطح مقطع خاموشی برحسب طول‌موج نشان داده شده است. به مجموع سطح مقطع جذب و پراکندگی، سطح مقطع خاموشی می‌گویند. تغییرات سطح مقطع جذب و خاموشی برحسب فاصله مشابه با شکل 2الف می‌باشد و با کاهش فاصله نانوذرات سطح مقطع جذب و خاموشی افزایش می‌یابند. به‌کارگیری نانوذرات جفت‌شده باعث ایجاد یک میدان الکترومغناطیسی بسیار قوی در فاصله بین نانوذرات از هم می‌شود. در شکل 3 توزیع شدت میدان الکتریکی برای زمانی که فاصله دو نانوذر از هم 10، 20 و 30 نانومتر به ترتیب در طول‌موج تشدید 820، 850 و 804 نانومتر رخ داده، نشان داده شده است. همان‌طور که مشاهده می‌کنید زمانی که فاصله بین نانوذرات 10 نانومتر است شدت میدان به بیشترین مقدار خود می‌رسد. با افزایش فاصله، شدت میدان کاهش می‌یابد و در فواصل دور نانوذرات تأثیری بر روی یکدیگر ندارند.



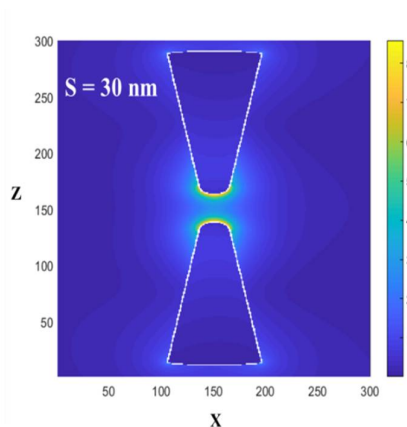
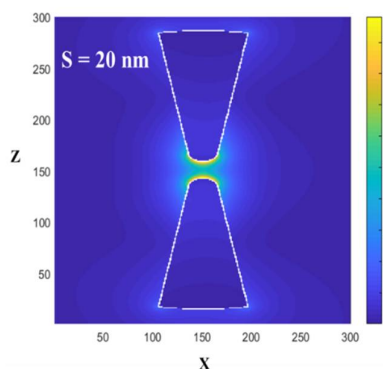
$$\eta_a = \frac{\Gamma_r}{\Gamma_t} = \frac{P_r}{P_t} \quad 4$$

در رابطه 4،  $P_t$  توان تابشی کل که به صورت مجموع توان تابشی و غیرتابشی بیان می‌شود. بهره آنتن هم به اندازه نرخ گسیل خودبه‌خود اهمیت دارد و نقش بسیار مهمی در کنترل نرخ فلوئورسانس دارد.

## نتایج

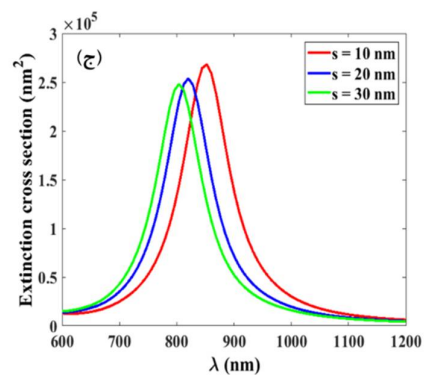
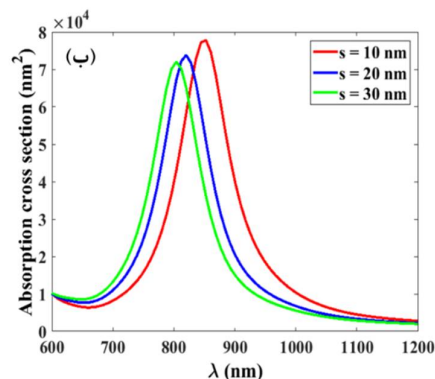
به صورت کلی نرخ فلوئورسانس از دو مرحله برانگیختگی و گسیل خودبه‌خود تشکیل می‌شود. نرخ فلوئورسانس به شدت میدان الکتریکی در محل گسیل کننده، بهره آنتن و نرخ واپاشی تابشی بستگی دارد. در این بخش به محاسبه این کمیت‌ها و بررسی تأثیر پارامترهای مختلف بر روی نرخ فلوئورسانس می‌پردازیم. از جمله این پارامترها می‌توان به زاویه تابش نور فرودی، فاصله دو نانوذر، مکان و جهت‌گیری مولکول اشاره کرد. برای محاسبه مرحله اول فلوئورسانس، نانوآنتن تحت تابش موج تخت قرار می‌گیرد. در ابتدا فرض کردیم که مولکول برانگیخته نشده است. با به‌کارگیری روش المان مرزی، سطح مقطع پراکندگی محاسبه می‌شود.

یکی از پارامترهای مؤثر به منظور افزایش سطح مقطع پراکندگی، فاصله دو نانوذر می‌باشد. شکل 2الف سطح مقطع پراکندگی برحسب طول‌موج را به‌ازای فواصل مختلف بین دو نانوذر نشان می‌دهد. به منظور بررسی تأثیر این پارامتر بر روی سطح مقطع پراکندگی، فواصل 10، 20 و 30 نانومتر را مورد مطالعه قرار می‌دهیم. همان‌طور که در شکل 2الف مشاهده می‌کنید سطح مقطع پراکندگی به فاصله بین دو نانوذر بستگی دارد. با

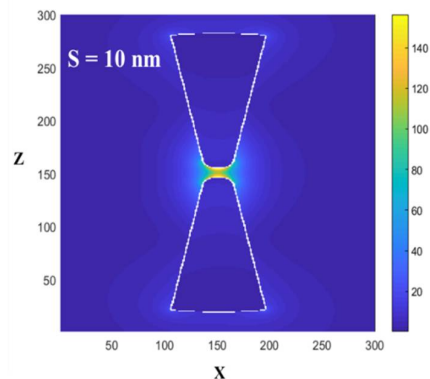


شکل 3. توزیع شدت میدان الکتریکی برای 2 نانوذره مخروطی شکل در صفحه  $xz$  به‌ازای فاصله  $S$  10، 20، و 30 نانومتر که به‌ترتیب در طول‌موج 850، 820 و 804 نانومتر رخ می‌دهد.

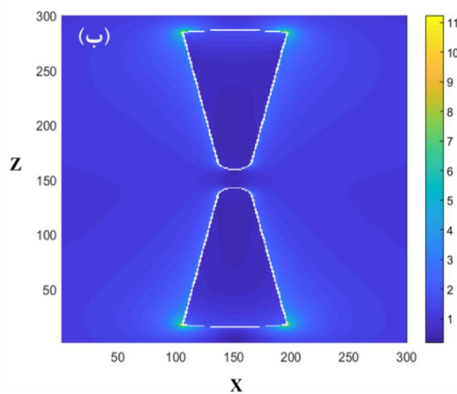
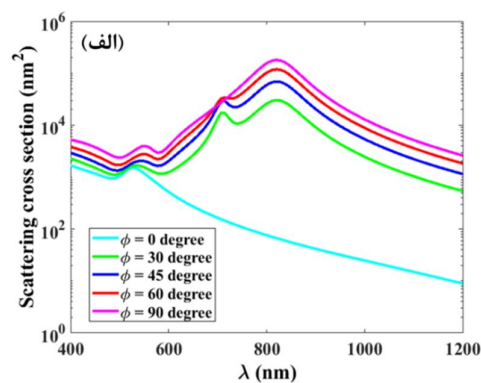
در شکل 4 الف سطح مقطع پراکندگی برای دو نانوذره مخروطی شکل که تحت تابش موج تخت با زوایای مختلف  $\phi$  قرار گرفته است، محاسبه شده است. نور فرودی موج تختی است که می‌تواند از جهت‌های مختلف بر نانوذره تابیده شود. نکته مهمی که از این نمودار استخراج می‌شود این است که نانوانت‌ن زمانی که تحت تابش موج تخت با زوایای 30، 45، 60 و 90 قرار می‌گیرد محل پیک تشدید در طول‌موج 820 نانومتر رخ می‌دهد در حالی که موج تخت با زاویه صفر درجه که به نانوانت‌ن تابیده می‌شود محل پیک تشدید



شکل 2. الف: سطح مقطع پراکندگی، ب: سطح مقطع جذب و ج: سطح مقطع خاموشی دو نانوذره مخروطی شکل به‌ازای فاصله  $S$  برحسب طول‌موج که تحت تابش موج تخت با قطبش  $Z$  قرار گرفته است.



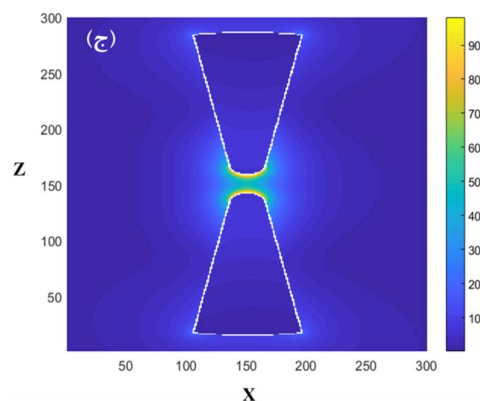
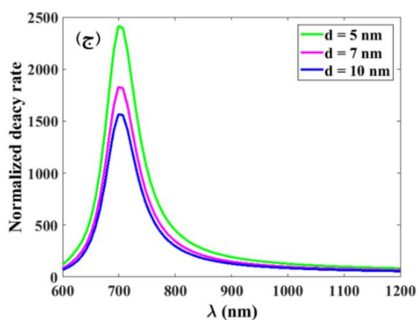
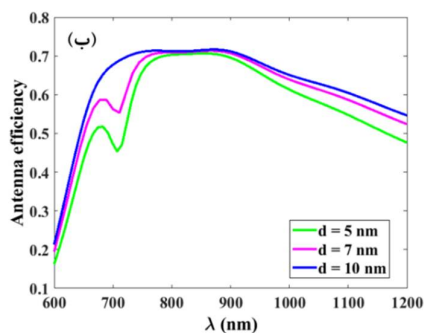
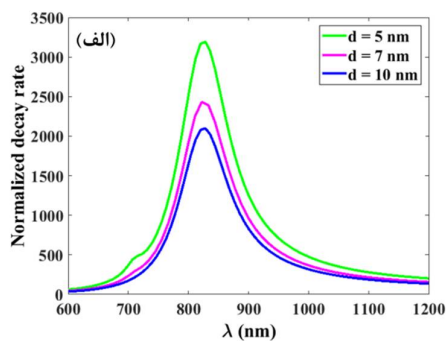
میدان الکتریکی عمود بر محور نانواتن باشد شدت میدان به کمترین مقدار خود می‌رسد (شکل 4ب). میزان افزایش در شدت میدان الکتریکی حاکی از آن است که تجمع بار در این نواحی بیشتر می‌باشد و مشاهده می‌گردد که جدایی بارها در جهت قطبش میدان نور فرودی است. توزیع شدت میدان الکتریکی محاسبه شده، در طول موج تشدید مربوط به نانوذره در هر زاویه تابش می‌باشد.



در طول موج 530 نانومتر رخ می‌دهد. به دلیل عدم تقارن در این هندسه، پاسخ نوری این نوع از نانواتن‌ها برخلاف نانوذرات کروی به قطبش نور فرودی وابسته است. در سطح مقطع پراکندگی برای نانوذره با هندسه کروی، به دلیل وجود تقارن هیچ تفاوتی بین زاویه‌های تابشی مختلف وجود ندارد. اما در نانواتن‌های مخروطی شکل، با توجه به راستای قطبش نور فرودی نسبت به محور نانواتن، که بستگی به زاویه تابش دارد، مدهای پلاسمونی متفاوتی در این مجموعه برانگیخته می‌شود. در زاویه 90 درجه قطبش نور فرودی در راستای محور بزرگ نانواتن قرار می‌گیرد بنابراین پلاسمون سطحی جایگزیده در راستای محور بزرگ مخروط رخ می‌دهد. اما در زاویه صفر درجه قطبش نور فرودی عمود بر محور نانواتن است و نمی‌تواند پلاسمون سطحی جایگزیده را در راستای محور بزرگ مخروط برانگیخته کند. در زاویه‌های بین 0 و 90 درجه آن قسمت از مؤلفه میدان الکتریکی که در راستای محور است، پلاسمون سطحی جایگزیده مورد نظر را برانگیخته می‌کند. به منظور درک بهتر از چگونگی تشکیل پلاسمون سطحی در نانوذرات مخروطی شکل، توزیع شدت میدان الکتریکی در صفحه XZ به ازای طول موج 530 نانومتر برای زمانی که میدان الکتریکی در راستای X و طول موج 820 نانومتر برای زمانی که میدان الکتریکی در راستای Z باشد، به ترتیب در شکل 4ب و 4ج نشان داده شده است. همان‌طور که مشاهده می‌کنید شدت میدان الکتریکی، زمانی که میدان الکتریکی در راستای محور نانواتن باشد به بیشترین مقدار خود می‌رسد (شکل 4ج) و زمانی که راستای



می‌گیریم. محاسبات برای زمانی که مولکول در فواصل 10–15 نانومتر از نانوذره قرار گرفته انجام شده است. شکل 5 الف نرخ واپاشی را به صورت تابعی از فاصله مولکول از نانوذره برحسب طول موج نشان می‌دهد. همانگونه که مشاهده می‌کنید نرخ واپاشی دارای یک بیشینه در طول موج 825 نانومتر می‌باشد. علاوه بر این، با کاهش فاصله مولکول از نانوذره نرخ واپاشی افزایش می‌یابد.



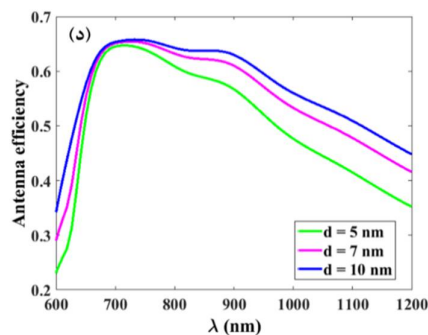
شکل 4. الف: سطح مقطع پراکندگی دو نانوذره مخروطی شکل به ازای زوایای مختلف تابش نور فرودی برحسب طول موج. توزیع شدت میدان الکتریکی به ازای زاویه تابش 0 و 90 درجه که به ترتیب در طول موج ب: 530 نانومتر ج: 820 نانومتر رخ می‌دهد.

اکنون با توجه به اینکه بررسی‌هایی بر روی سطح مقطع پراکندگی انجام شد، می‌توان گفت طول موج تشدید پلاسمونی مورد نظر در هر مورد مشخص شده است. بنابراین اگر نور پراکنده شده در این طول موج‌ها به مولکول برخورد کند، احتمال برانگیختگی مولکول بالا می‌رود که با محاسبه نرخ واپاشی مولکول می‌توان نشان داد که در چه طول موج‌هایی نرخ گسیل مولکول بالا است. زمانی که مولکول برانگیخته می‌شود، مولکول را می‌توان به صورت دوقطبی الکتریکی در نظر گرفت. با به‌کارگیری روش المان مرزی به محاسبه برهم‌کنش دوقطبی و نانوذرات می‌پردازیم. نرخ واپاشی تابشی مولکول طبق رابطه 3 محاسبه می‌شود.

یکی از پارامترهای بسیار مهم بر روی نرخ واپاشی فاصله مولکول از نانوذره می‌باشد. به همین منظور، مولکول را در مرکز نانوذره با جهت‌گیری در راستای Z همان‌طور که در شکل 1 نشان داده شده است در نظر

شکل 5الف می‌باشد و با کاهش فاصله مولکول از نانوذره نرخ واپاشی افزایش می‌یابد. با مقایسه شکل 5الف و 5ج مشاهده می‌کنید که با افزایش ارتفاع نانوانتن پیک تشدید به سمت طول‌موج‌های بلندتر جابه‌جا می‌شود. تفاوت اساسی در این دو نمودار این است که نرخ واپاشی به‌ازای ارتفاع 140 نانومتر در مقایسه با ارتفاع 100 نانومتری به بیش از 3000 می‌رسد. به‌منظور بررسی بیشتر این موضوع، بهره‌آنتن را محاسبه کردیم. همان‌طور که در شکل 5ب و 5د مشاهده می‌شود، با افزایش فاصله گسیل‌کننده از نانوانتن بهره‌آنتن افزایش می‌یابد. به‌دلیل اینکه در فواصل دورتر نسبت به نانوانتن نرخ واپاشی غیرتابشی کاهش می‌یابد و در نتیجه بر طبق رابطه 4 با افزایش فاصله گسیل‌کننده از نانوانتن بهره‌آنتن به مقدار 1 نزدیک‌تر می‌شود. بهره‌آنتن به‌ازای ارتفاع 140 نانومتر (شکل 5ب) نسبت به ارتفاع 100 نانومتر (شکل 5د)، 10 درصد افزایش یافته است.

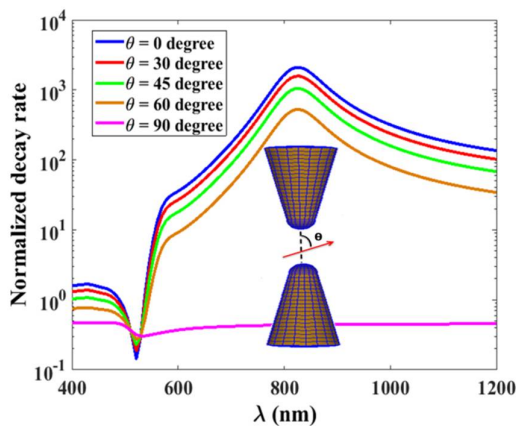
تمام محاسبات بالا برای یک مولکول که در راستای محور نانوانتن قرار دارد انجام شده است. به‌منظور بررسی تأثیر مکان مولکول، مولکول را در امتداد خط قائم در مرکز نانوانتن در مکان‌های گوناگون قرار می‌دهیم و نرخ واپاشی را برای زمانی که مولکول در مرکز نانوانتن قرار دارد مقایسه می‌کنیم. نتایج در شکل 6 نشان داده شده است. محاسبات برای زمانی است که دو نانوذره در فاصله 20 نانومتر و مولکول در فاصله ثابت 10 نانومتر از نانوذره قرار گرفته است، انجام شده است.



شکل 5. الف: نرخ واپاشی تابشی. ب: بهره‌آنتن به‌صورت تابعی از طول‌موج. ارتفاع نانوانتن 140 نانومتر می‌باشد. ج: نرخ واپاشی تابشی. د: بهره‌آنتن به‌صورت تابعی از طول‌موج. ارتفاع نانوانتن 100 نانومتر می‌باشد.

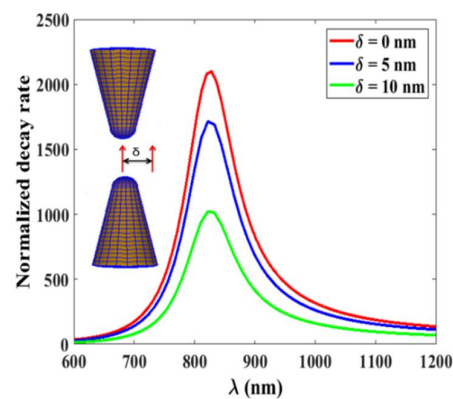
ضریب شکست نانوذرات فلزی از دو بخش تشکیل می‌شود که قسمت حقیقی نشان‌دهنده پاشندگی و قسمت موهومی نشان‌دهنده جذب می‌باشد. به‌دلیل وجود قسمت موهومی در ضریب شکست نانوذرات فلزی مقداری از تابش ناشی از مولکول در نانوذره جذب می‌شود. در فواصل بسیار نزدیک، نرخ واپاشی می‌تواند چند هزار برابر شود. اما باید توجه داشت که در این فواصل احتمال گسیل غیرتابشی که منجر به اتلاف انرژی درون نانوذره می‌گردد، افزایش می‌یابد. بنابراین دستیابی به بالاترین نرخ واپاشی مستلزم انتخاب یک فاصله مناسب، که هم نرخ واپاشی از مقدار بالایی برخوردار باشد و هم جذب در نانوانتن کمتر شود، از طریق روش‌های بهینه‌سازی می‌باشد. البته از لحاظ عملی محدودیت‌هایی وجود دارد که نمی‌توان مولکول را تا حد دلخواه به نانوانتن نزدیک کرد. شکل 5ج همین پارامتر را مورد بررسی قرار می‌دهد، با این تفاوت که ارتفاع نانوانتن 100 نانومتر می‌باشد. تغییرات نرخ واپاشی برحسب فاصله مشابه با

در حالی که نرخ واپاشی به ازای مولکول با جهت گیری عمود بر محور نانوانتن به کمترین مقدار خود می رسد. به کمک روش تصویر، می توان نقش نانوانتن در تابش مولکول را برای دو حالت تعامد توضیح داد. زمانی که مولکول در امتداد محور نانوانتن قرار گرفته است مولکول و تصویر آن تأثیر یکدیگر را تقویت می کنند به دلیل اینکه نوسان بارها در نانوذره هم فاز با نوسان دوقطبی است بنابراین باعث افزایش نرخ واپاشی می گردد. هنگامی که مولکول عمود بر محور نانوانتن قرار می گیرد تابش ناشی از تصویر و مولکول یکدیگر را تضعیف می کنند به دلیل اینکه نوسان بارها در نانوذره و نوسان دوقطبی غیر هم فاز است.



شکل 7. نرخ واپاشی تابشی برحسب طول موج به ازای جهت گیری های مختلف مولکول. مولکول در مرکز دو نانوذره قرار گرفته است.

بیشینه نرخ واپاشی به ازای زوایای 0، 30، 45 و 60 درجه مولکول در طول موج 825 نانومتر رخ می دهد. در حالی که بیشینه نرخ واپاشی به ازای زاویه 90 درجه مولکول در طول موج 490 نانومتر رخ می دهد و به سمت طول موج های کوتاه تر جابه جا می شود. دلیل این



شکل 6. نرخ واپاشی تابشی مولکول برحسب طول موج که در مرکز دو نانوذره و در راستای محور نانوانتن قرار گرفته است.

همان طور که مشاهده می شود، با افزایش فاصله مولکول از محور اصلی نرخ واپاشی کاهش می یابد. دور شدن مولکول از نانوذره باعث کاهش تأثیر نانوانتن بر روی نرخ واپاشی می شود. در فواصل بسیار دور نرخ واپاشی تابشی مولکول با نرخ واپاشی در غیاب نانوذره برابر می شود. بنابراین به منظور افزایش نرخ واپاشی بهتر است که مولکول در راستای محور اصلی قرار بگیرد. همان طور که می دانیم، دوقطبی که در مرکز دو نانوذره قرار می گیرد دارای جهت گیری های متفاوتی می باشد. یکی از جهت گیری ها موازی با محور نانوانتن (زاویه 0 درجه) و دیگری عمود بر محور نانوانتن (زاویه 90 درجه) می باشد. در این مقاله علاوه بر این دو جهت گیری، مولکول تحت زوایای 30، 45 و 60 درجه نیز مورد بررسی قرار می گیرد. در شکل 7 نرخ واپاشی برحسب طول موج به ازای جهت گیری های متفاوت مولکول محاسبه شده است. همان طور که مشاهده می کنید زمانی که مولکول در راستای محور نانوانتن قرار می گیرد نرخ واپاشی به بیشترین مقدار خود می رسد

نظری دست یافت. گرچه در حال حاضر امکان قرار دادن گسیل‌کننده در مکان دقیق و تحت زاویه دلخواه مانند موارد بحث شده در این مقاله وجود ندارد، اما نتایج تئوری می‌تواند اطلاعات مفیدی را در اختیار آزمایشگر قرار دهد تا با استفاده از طیف‌های گوناگون اطلاعات دقیق‌تری در خصوص چگونگی قرارگیری گسیل‌کننده در مجاورت نانوانتن را به دست آورد [5,17]. همچنین، با بهره‌گیری از این نتایج امکان پیش‌بینی پیکربندی آزمایشگاهی مناسب برای دستیابی به نرخ فلئورسانس مورد نظر فراهم می‌گردد.

#### مرجع‌ها

- [1] O. Selig, R. Siffels, Y.L.A. Rezus, Ultrasensitive ultrafast vibrational spectroscopy employing the near field of gold nanoantennas, *Physical review letters* **114** (2015) 233004. <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.114.233004>
- [2] T.V. Raziman, O.J. Martin, Orientation dependence of plasmonically enhanced spontaneous emission, *The Journal of Physical Chemistry C* **120** (2016) 21037-21046. <https://doi.org/10.1021/acs.jpcc.6b03297>
- [3] A.M. Flatae, F. Tantussi, G.C. Messina, A. Mohammadi, F. Angelis, M. Agio, Plasmonic Gold Nanocones in the Near Infrared for Quantum Nano-Optics, *Advanced Optical Materials* **5** (2017) 170058. <https://doi.org/10.1002/adom.201700586>
- [4] M. Sukharev, N. Freifeld, A. Nitzan, Numerical calculations of radiative and non-radiative relaxation of molecules near metal particles, *The Journal of Physical Chemistry C* **118** (2014) 10545-10551. <https://doi.org/10.1021/jp4104245>

جابه‌جایی به سمت طول‌موج کوتاه‌تر، ناشی از برهم‌کنش دوقطبی-دوقطبی بین نانوذره و مولکول می‌باشد.

#### نتیجه‌گیری

در این مقاله به چگونگی افزایش نرخ فلئورسانس مولکول توسط روش المان مرزی پرداخته شد. مدل مورد بررسی یک مولکول در مرکز نانوانتن مخروطی شکل از جنس طلا که تحت تابش موج تخت قرار گرفته است، در نظر گرفته شد. با بررسی پارامترهای مؤثر در افزایش نرخ فلئورسانس نشان داده شد که با نزدیک شدن مولکول به نانوانتن نرخ واپاشی تابشی افزایش می‌یابد، اما بهره‌آنتن به دلیل اتلاف انرژی درون نانوذره طلا کاهش می‌یابد. زمانی که مولکول در میدان نزدیک نانوانتن قرار می‌گیرد، انرژی تابش شده از مولکول درون نانوانتن اتلاف می‌شود. بنابراین به دلیل وجود جذب درون نانوذره پارامتر فاصله باید با دقت بیشتری بررسی شود. نتایج نشان داد که نرخ واپاشی تابشی به مکان و جهت‌گیری مولکول بستگی دارد. زمانی که مولکول در راستای محور نانوانتن قرار می‌گیرد، نرخ واپاشی تابشی به چند صد برابر افزایش یافت. زاویه تابش نور فرودی از جمله پارامترهایی است که تأثیر بسیار چشمگیری بر روی سطح مقطع پراکندگی نشان داد. در صورتی که جهت میدان الکتریکی در راستای محور نانوانتن باشد سطح مقطع پراکندگی به بیشینه مقدار خود می‌رسد. با در نظر گرفتن این تأثیرات در محاسبات تئوری، می‌توان به هم‌خوانی بهتری میان نتایج آزمایشگاهی و محاسبات

- [14] A. Bansal, S.S. Verma, Size and surrounding medium effects on plasmonic response of Au-Ag-Cu nanospheres, *In Emerging Electronics (ICEE)* (2014) 1-4. [10.1109/ICEmElec.2014.7151175](https://doi.org/10.1109/ICEmElec.2014.7151175)
- [15] E.M. Purcell, Spontaneous emission probabilities at radio frequency, *Physical Review* **69** (1946) 681. [https://doi.org/10.1007/978-1-4615-1963-8\\_40](https://doi.org/10.1007/978-1-4615-1963-8_40)
- [16] A. Mohammadi, V. Sandoghdar, M. Agio, Gold nanorods and nanospheroids for enhancing spontaneous emission, *New Journal of Physics* **10** (2008) 105015. <https://doi.org/10.1088/1367-2630/10/10/105015>
- [17] A. Mohammadi, F. Kaminski, V. Sandoghdar, M. Agio, Fluorescence enhancement with the optical (bi-) conical antenna, *The Journal of Physical Chemistry C* **114** (2010) 7372-7377. <https://doi.org/10.1021/jp9094084>
- [18] A. Firoozi, A. Mohammadi, M. Agio, Plasmonic Core-Shell Nanocones for Enhancing Spontaneous Emission. *The 7<sup>th</sup> International Conference on Nanostructures (ICNS7)* (2018).
- [19] S. Sun, L. Wu, P. Bai, C.E. Png, Fluorescence enhancement in visible light: dielectric or noble metal?, *Physical Chemistry Chemical Physics* **18** (2016) 19324-19335. [10.1039/c6cp03303b](https://doi.org/10.1039/c6cp03303b)
- [20] G. Lu, T. Zhang, W. Li, L. Hou, J. Liu, Q. Gong, Single-molecule spontaneous emission in the vicinity of an individual gold nanorod, *The Journal of Physical Chemistry C* **115** (2011) 15822-15828. <https://doi.org/10.1021/jp203317d>
- [21] S. D'Agostino, F. Della Sala, L.C. Andreani, Dipole decay rates engineering via silver nanocones, *Plasmonics* **8** (2013) 1079-1086. <https://doi.org/10.1007/s11468-013-9512-3>
- [22] A. Taflove, S.G. Hagness, Computational electrodynamics: the finite-difference time-domain method, *Artech house* (2005).
- [23] C. Hafner, Post-modern electromagnetics. *John Wiley & Sons* (1999).
- [5] X.W. Chen, M. Agio, V. Sandoghdar, Metallodielectric hybrid antennas for ultrastrong enhancement of spontaneous emission, *Physical review letters* **108** (2012) 233001. <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.108.233001>
- [6] M. Dipalo, G.C. Messina, H. Amin, R. La Rocca, V. Shalabaeva, A. Simi, F. De Angelis, 3D plasmonic nanoantennas integrated with MEA biosensors, *Nanoscale* **7** (2015) 3703-3711.
- [7] K.M. Mayer, J.H. Hafner, Localized surface plasmon resonance sensors, *Chemical Reviews* **111** (2011) 3828-3857. <https://doi.org/10.1021/cr100313v>
- [8] H. Ding, L. Lalouat, B. Gonzalez-Acevedo, R. Orobtcouk., C. Seassal, E. Drouard, Design rules for net absorption enhancement in pseudo-disordered photonic crystal for thin film solar cells, *Optics express* **24** (2016) A650-A666. <https://doi.org/10.1364/OE.24.00A650>
- [9] L. Zhou, X. Yu, J. Zhu, Metal-core/semiconductor-shell nanocones for broadband solar absorption enhancement, *Nano letters* **14** (2014) 1093-1098. <https://doi.org/10.1021/nl500008y>
- [10] A. Mohammadi, F. Kaminski, V. Sandoghdar, M. Agio, Spheroidal nanoparticles as nanoantennas for fluorescence enhancement, *International Journal of Nanotechnology*. **6** (2009) 902-914. <https://doi.org/10.1504/IJNT.2009.027554>
- [11] A. Mohammadi, V. Sandoghdar, M. Agio, Gold, copper, silver and aluminum nanoantennas to enhance spontaneous emission, *Journal of Computational and Theoretical Nanoscience* **6** (2009) 2024-2030. <https://doi.org/10.1166/jctn.2009.1259>
- [12] L. Novotny, B. Hecht, Principles of nano-optics, *Cambridge university press* (2006).
- [13] S. D'Agostino, F. Della Sala, L.C. Andreani, Dipole-excited surface plasmons in metallic nanoparticles: Engineering decay dynamics within the discrete-dipole approximation, *Physical Review B* **87** (2013) 205413. <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.87.205413>

[24] G. Dhatt, G. Touzot. Finite element method. *John Wiley & Sons* (2012).

[25] U. Hohenester, J. Krenn, Surface plasmon resonances of single and coupled metallic nanoparticles: A boundary integral method approach, *Physical Review B* **72** (2005) 195429. <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.72.195429>

[26] P.B. Johnson, R.W. Christy, Optical constants of the noble metals, *Physical Review B* **6** (1972) 4370-4379. <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.6.4370>

[27] J.W. Liaw, C.S. Chen, J.H. Chen, Enhancement or quenching effect of metallic nanodimer on spontaneous emission, *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer* **111** (2010) 454-465. <https://doi.org/10.1016/j.jqsrt.2009.09.009>