

不对称光热与光力协同作用实现等离激元 圆二色光谱的选择性调控

魏思雨 黄浩 马小云 黄海文 徐欣 王荣瑶[†]

(北京理工大学物理学院, 北京 100081)

第一部分光热效应计算

GNR手性三聚体的光热 CD 表示为:

$$CD_{\Delta T_{\text{rise}}} = \Delta T_{\text{rise}}^{\text{LCP}} - \Delta T_{\text{rise}}^{\text{RCP}}, \quad (\text{S1})$$

其中 $\Delta T_{\text{rise}}^{\text{LCP}}$ 和 $\Delta T_{\text{rise}}^{\text{RCP}}$ 分别为LCP和RCP激发下GNR手性三聚体上的局部温度增长。在我们的系统中, 设置常温 $T_0 = 25\text{ }^\circ\text{C}$, 入射光照射下模型产生的光热温度 T_{rise} 和局部温度增长 ΔT_{rise} 满足:

$$T_{\text{rise}} = T_0 + \Delta T_{\text{rise}}, \quad (\text{S2})$$

通过热扩散方程:

$$\nabla \cdot [k(r) \nabla T_{\text{rise}}(r)] = 0, \quad (\text{S3})$$

$$\nabla \cdot [k(r) \nabla T_{\text{rise}}(r)] = -q(r), \quad (\text{S4})$$

其中 $k(r)$ 为热导率, $q(r)$ 为热源密度。公式(S3)和公式(S4)分别为金纳米棒外部和内部的方程。由此可得系统的 ΔT_{rise} 为:

$$\Delta T_{\text{rise}} = \frac{Q_{(\text{NC})}}{4\pi k_w} \cdot \frac{1}{r}, \quad (\text{S5})$$

其中 $Q_{(\text{NC})} = \sigma_{\text{NC}} \times I$, $Q_{(\text{NC})}$ 为GNR手性三聚体吸收的光功率, σ_{NC} 为GNR手性三聚体的吸收截面, I 为激光功率密度。水的导热系数 $k_w = 0.6\text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$, r 为坐标位置到该结构中心的距离。

第二部分实验方法

我们所使用的样品为通过种子介导法合成的被CTAB分子包裹的GNR溶液, 其中GNR单体的平均长度为65 nm, 直径为22 nm。在实验中, 我们将GNRs分散在0.5 mM (1 M = 1 mol/L) CTAB溶液中, 得到GNR/CTAB胶体溶液(100 pM)。3 °C水浴静置一夜后, 在胶体溶液中添加L-/D-cys(1 μM)溶液, 使非手性GNRs形成L-/D-GNRs。40 min后, 在胶体溶液中添加cit (100 μM)溶液, 促使L-GNRs和D-GNRs分别组装为L-GNR寡聚体和D-GNR寡聚体, 组装全程施加LPL/LCP/RCP的激光照射4 min。

[†] 通信作者。 E-mail: wangry@bit.edu.cn

第三部分补充图

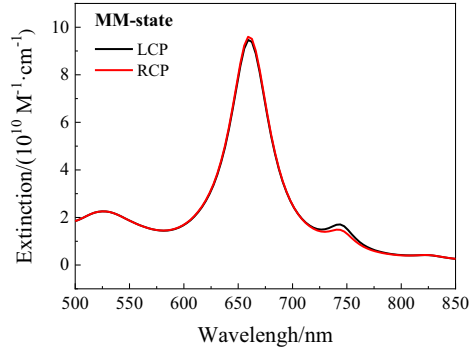


图 S1 MM 型 GNR 三聚体的消光光谱

Fig. S1. The extinction spectra of MM-state GNR trimer.

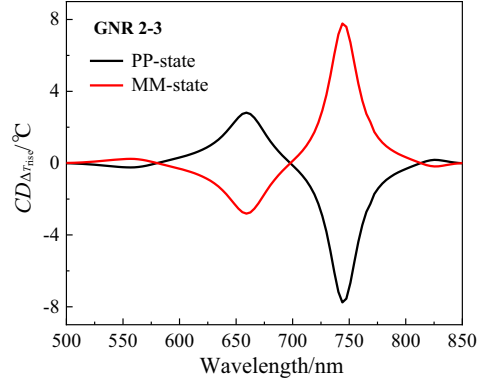


图 S2 GNR2-3 间隙中心位置处的光热 CD 光谱。入射光功率密度为 $I = 1.4 \times 10^8 \text{ mW} \cdot \text{cm}^{-2}$

Fig. S2. The photothermal CD spectra at the center position of the GNR2-3 gap. The laser power density $I = 1.4 \times 10^8 \text{ mW} \cdot \text{cm}^{-2}$

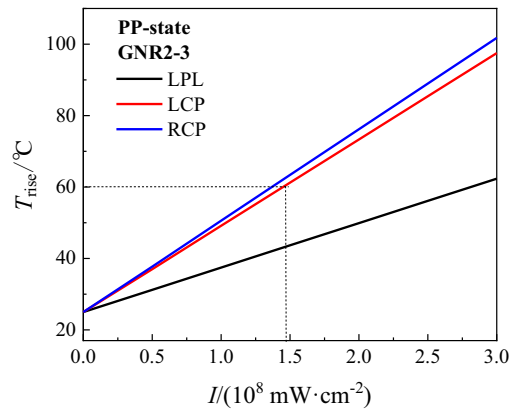


图 S3 不同激光功率密度下 PP 型 GNR 三聚体中 GNR2-3 在间隙中心位置的光热温度

Fig. S3. The photothermal temperature of GNR2-3 at the center of the gap in PP-state GNR trimer under different laser power densities.

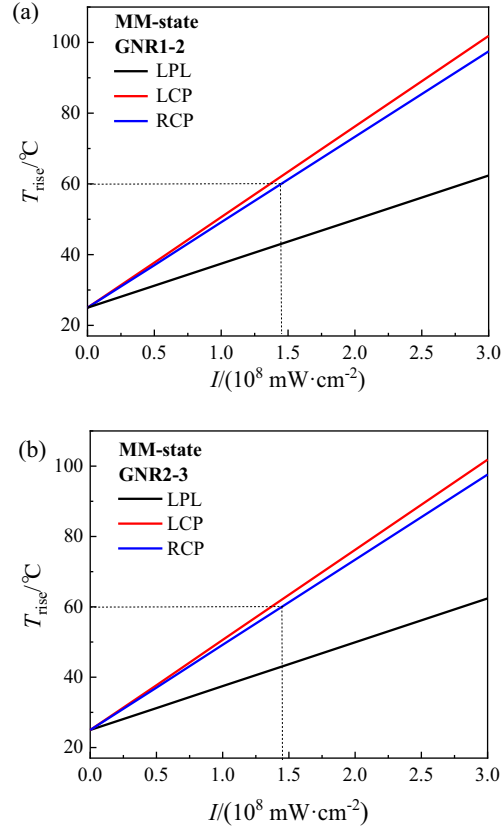


图 S4 不同激光功率密度下 MM 型 GNR 三聚体中 (a) GNR1-2 和 (b) GNR2-3 在间隙中心位置的光热温度
Fig. S4. The photothermal temperature of (a) GNR1-2 and (b) GNR2-3 at the center of the gap in MMstate GNR trimer under different laser power densities.

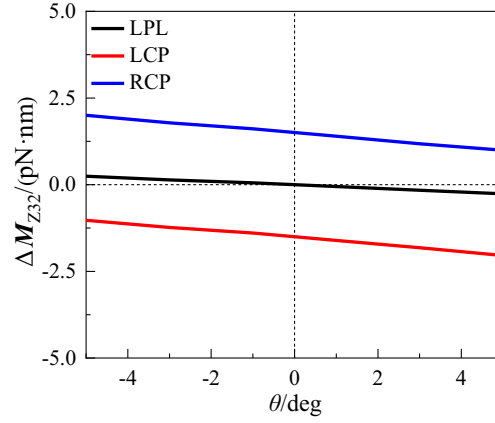


图 S5 不同偏振态的激光激发下不同扭转角 ($0^\circ < |\theta_0| < 5^\circ$) 范围内的 GNR3 相对于 GNR2 的光扭矩 $\Delta \mathbf{M}_{Z32}$ 。其中激光波长为 721 nm, 功率密度 $I = 1.46 \times 10^8 \text{ mW}\cdot\text{cm}^{-2}$

Fig. S5. The optical torque $\Delta \mathbf{M}_{Z32}$ of GNR3 relative to GNR2 within different torsion angles ($0^\circ < |\theta_0| < 5^\circ$) ranges under laser excitation of different polarization states. The laser wavelength is 721 nm, power density $I = 1.46 \times 10^8 \text{ mW}\cdot\text{cm}^{-2}$ environments.

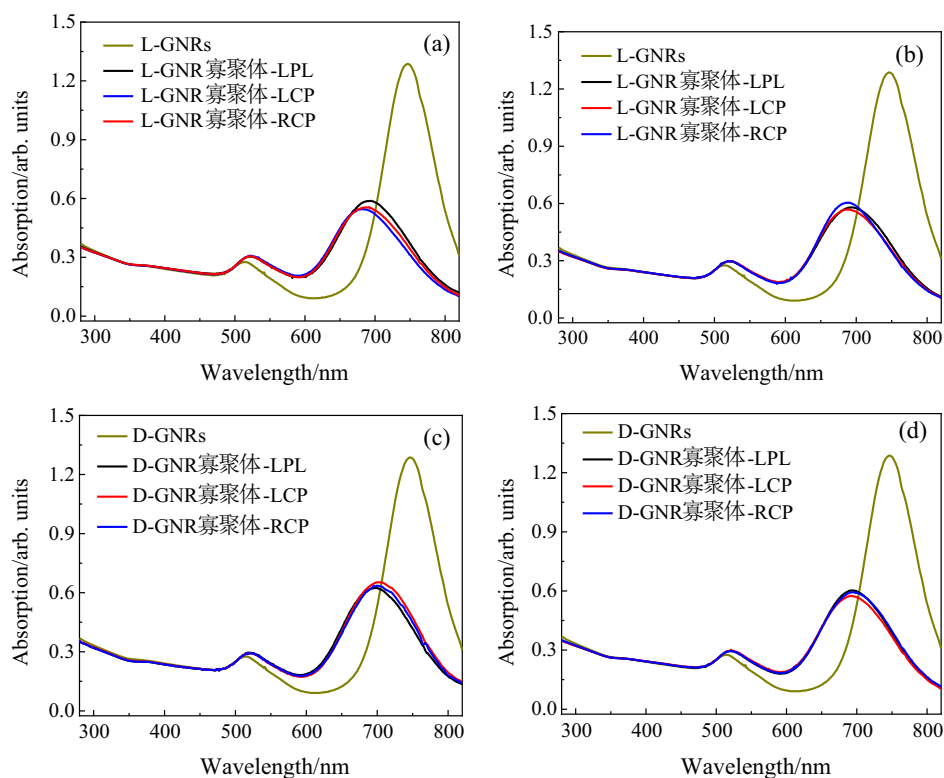


图 S6 (a), (b) L-GNR 寡聚体的其他两组吸收光谱图; (c), (d) D-GNR 寡聚体的其他两组吸收光谱图
Fig. S6. (a), (b) Two other absorption spectra of L-GNR oligomers; (c), (d) two other absorption spectra of D-GNR oligomers.

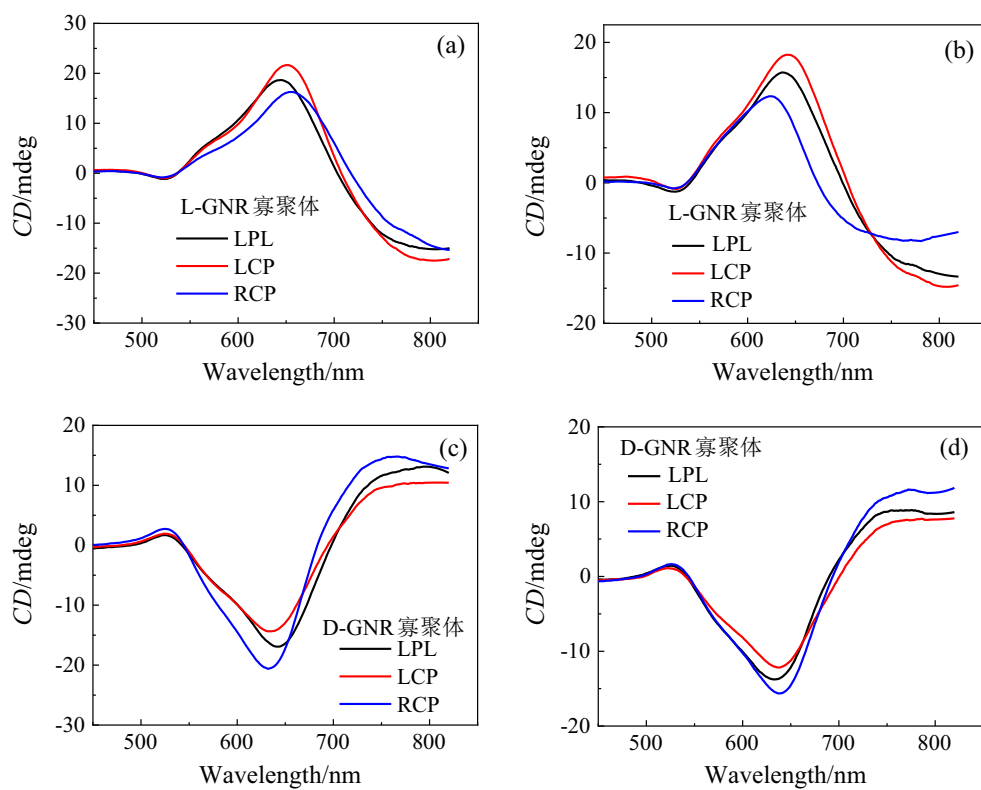


图 S7 (a), (b) L-GNR 寡聚体的其他两组 CD 光谱图; (c), (d) D-GNR 寡聚体的其他两组 CD 光谱图
Fig. S7. (a), (b) Two other sets of CD spectra of L-GNR oligomers; (c), (d) two other sets of CD spectra of D-GNR oligomers.