

Московский государственный университет им. М. В. Ломоносова,
физический факультет, кафедра общей физики и волновых процессов

Курсовая работа
студента 525 группы Пастухова В. М.

**ВЛИЯНИЕ МЕТАЛЛИЧЕСКОЙ СФЕРИЧЕСКОЙ НАНОАНТЕННЫ НА
СПЕКТР РЕЗОНАНСНОЙ ФЛУОРЕСЦЕНЦИИ ДВУХУРОВНЕВЫХ
АТОМОВ**

Научный руководитель
к. ф-м. н. Владимирова Ю. В.

Рецензент
к. ф-м. н. Коновко А. А.

2012 г.

Содержание

1	Введение	2
2	Оптические свойства сферической наноантенны	3
2.1	Случай линейно поляризованного падающего поля	3
2.2	Случай эллиптически поляризованного падающего поля . .	6
3	Влияние наноантенны на скорость распада атома	8
4	Расчет спектра резонансной флуоресценции	11
4.1	Случай линейно поляризованного падающего поля	11
4.2	Случай эллиптически поляризованного падающего поля . .	16
5	Спектр резонансной флуоресценции в случае N двухуровневых атомов, расположенных вокруг наноантенны	18
6	Заключение	21

1 Введение

В настоящее время одним из наиболее интересных направлений развития современной физики является изучение физических явлений на наноразмерных масштабах, вплоть до одиночных атомов и молекул. Наноплазмоника — одно из этих направлений, в котором изучаются явления, связанные с колебаниями электронов проводимости в металлических наноструктурах и наночастицах и взаимодействием этих колебаний со светом, атомами и молекулами, с целью создания сложных оптических наноприборов [1, 2].

Большой интерес к наноплазмонике возник в начале XXI века и связано это, в первую очередь, с тем, что современные нанотехнологии позволяют синтезировать наночастицы практически произвольной формы и состава. Кроме того, современная диагностическая техника позволяет детально изучать свойства отдельных наночастиц, а современные компьютеры и вычислительные методы позволяют предсказывать их свойства [1, 2].

Металлические наночастицы также называют наноантеннами, поскольку они, по аналогии с радиоантеннами, осуществляющими преобразование электромагнитного излучения в радиоволновом диапазоне в электрический ток, преобразуют дальнейшее электромагнитное поле в ближнее [1, 3]. Соответственно, наноантенны позволяют эффективно концентрировать энергию падающего излучения в нанометровой области и управлять процессами излучения квантовой системы, расположенной вблизи наночастицы, в том числе и изменяя геометрические параметры наноантенны.

Металлические наночастицы используются для обнаружения и исследования отдельных атомов и молекул, для управления их оптическими свойствами, в том числе для управления флуоресценцией, например, применяются для усиления флуоресценции флуорофоров. Следует отметить, что одним из перспективных применений наноантенн является расшифровка структуры ДНК [4, 5, 6].

Чаще всего в качестве наноантенн рассматриваются частицы сферической формы, так как они довольно просто описываются аналитически и их проще изготовить. В большинстве работ, связанных с изучением влияния металлических наночастиц на излучательные свойства атомов, исследуется изменение скорости излучательной релаксации. Теория резонансной флуоресценции двухуровневой квантовой системы подробно изложена в [7], интерес также представляет работа [8]. Работ же, посвященных изучению изменения спектра резонансной флуоресценции вблизи нанотел, мало [9, 11].

Настоящая работа призвана заполнить имеющийся здесь пробел и посвящена изучению влияния металлической наноантенны на спектр резонансной флуоресценции двухуровневого атома, расположенного около ее поверхности. В связи с этим рассмотрено влияние поляризации падающего излучения на спектр резонансной флуоресценции двухуровневого атома в присутствии серебряной наночастицы. Следует отметить, что в эксперименте часто имеют дело с несколькими атомами, расположенными около наноантенны. Чтобы показать, как изменяется спектр в случае нескольких атомов, рассчитан спектр для случая N не взаимодействующих друг с другом атомов, расположенных вокруг сферической серебряной наноантенны.

2 Оптические свойства сферической наноантенны

Спектр резонансной флуоресценции двухуровневого атома, расположенного в точке с радиус-вектором \mathbf{r}_0 , зависит от величины, направления поля в данной точке и поляризации. Поэтому начнем с расчета поля, создаваемого наночастицей, для случаев линейно поляризованного и эллиптически поляризованного падающего поля.

2.1 Случай линейно поляризованного падающего поля

В случае наночастицы, когда характерные размеры частицы много меньше длины волны падающего излучения $\lambda = 632.8$ нм, для расчета поля, создаваемого частицей, можно использовать квазистатическое приближение [1]. Квазистатическое приближение заключается в пренебрежении запаздыванием от различных частей наноантенны.

Схема рассматриваемой системы в случае линейно поляризованного падающего поля представлена на рисунке 1, где \vec{E}_0 , $|\vec{E}_0| = 2000$ В/м — напряженность падающего линейно поляризованного поля, \vec{k} — волновой вектор, a — радиус наносферы, ε и ε_2 — диэлектрические проницаемости материала наночастицы и окружения соответственно, \vec{d} — матричный элемент дипольного момента перехода атома. В дальнейшем, если это отдельно не оговорено, $a = 20$ нм, $|\vec{E}_0| = 2000$ В/м, $\varepsilon = 15.47 + i0.23$, $\varepsilon_2 = 1$, $\lambda = 632.8$ нм. Предполагается, что диполь направлен по полю.

Как показано в [1], в случае наносферы радиуса $a \ll \lambda$, на которую падает плоская линейно поляризованная вдоль оси z электромагнитная

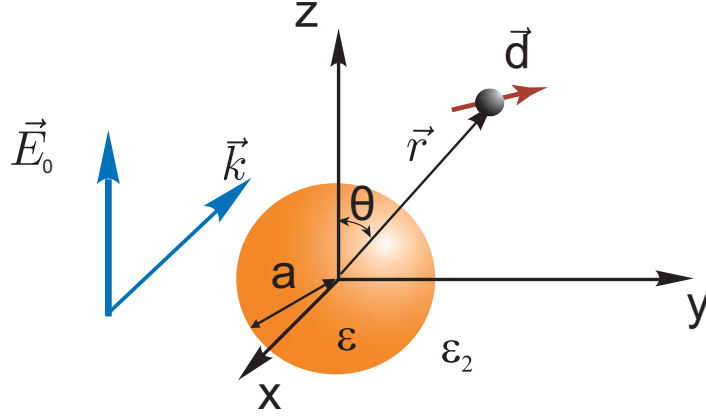


Рис. 1: Схема исследуемой системы в случае линейно поляризованного падающего поля. \vec{E}_0 , $|\vec{E}_0| = 2000$ В/м — напряженность падающего линейно поляризованного поля, \vec{k} — волновой вектор, a — радиус наносферы, ε и ε_2 — диэлектрические проницаемости материала наночастицы и окружения соответственно, \vec{d} — матричный элемент дипольного момента перехода атома. В дальнейшем, если это отдельно не оговорено, $a = 20$ нм, $|\vec{E}_0| = 2000$ В/м, $\varepsilon = 15.47 + i0.23$, $\varepsilon_2 = 1$.

волна, поле внутри частицы

$$\mathbf{E} = E_r \hat{\mathbf{n}}_r + E_\theta \hat{\mathbf{n}}_\theta = E_0 \frac{3}{\varepsilon(\omega) + 2} (\cos \theta \hat{\mathbf{n}}_r - \sin \theta \hat{\mathbf{n}}_\theta), \quad (1)$$

поле вне частицы

$$\mathbf{E} = E_r \hat{\mathbf{n}}_r + E_\theta \hat{\mathbf{n}}_\theta = E_0 (\cos \theta \hat{\mathbf{n}}_r - \sin \theta \hat{\mathbf{n}}_\theta) + E_0 \frac{a^3 \varepsilon(\omega) - 1}{r^3 \varepsilon(\omega) + 2} (2 \cos \theta \hat{\mathbf{n}}_r + \sin \theta \hat{\mathbf{n}}_\theta), \quad (2)$$

где $\hat{\mathbf{n}}_r$, $\hat{\mathbf{n}}_\theta$ — единичные векторы сферической системы координат.

Таким образом из формулы (2) следует, что рассеянное поле вне частицы является полем диполя, ориентированным вдоль направления поляризации падающего поля.

Когда на наночастицу падает линейно поляризованное поле, суммарное поле вне частицы (2), вообще говоря, эллиптически поляризовано (вследствие того, что ε — комплексная величина), но разность фаз между E_r и E_θ меньше 0.01 рад. Поэтому в расчетах для случая линейно поляризованного падающего поля рассеянное поле рассматривается также линейно поляризованным.

На рисунке 2 представлено пространственное распределение модуля радиальной и тангенциальной составляющей напряженности поля вне частицы, нормированных на модуль напряженности падающего поля.

На рисунке 3 показано, как направлено поле вблизи наночастицы для случая линейно поляризованного падающего поля.

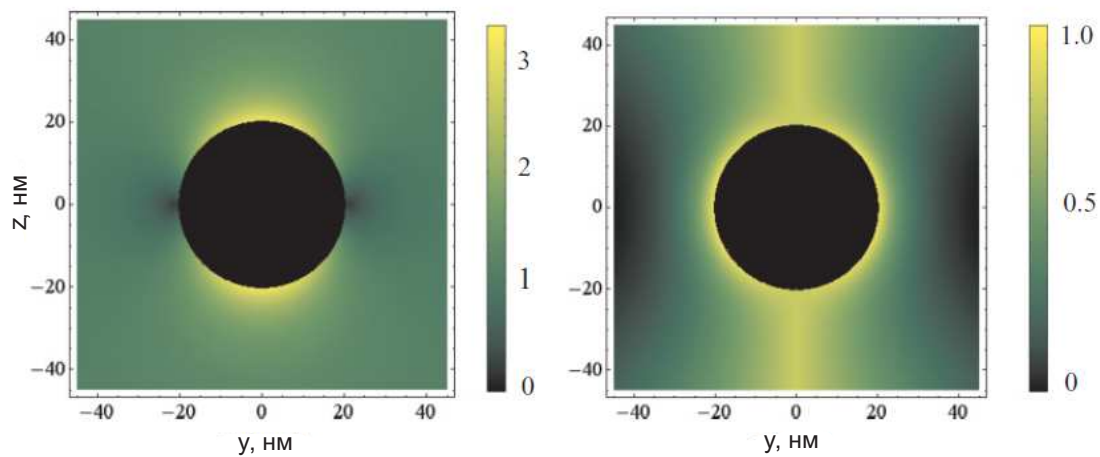


Рис. 2: Пространственное распределение модуля радиальной E_r (слева) и тангенциальной E_θ (справа) составляющей напряженности поля вне частицы в плоскости yz , нормированных на модуль напряженности падающего поля.

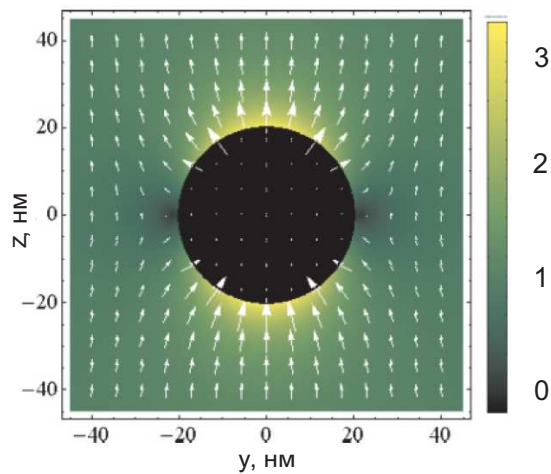


Рис. 3: Пространственное распределение напряженности поля вблизи наночастицы, нормированной на модуль напряженности падающего поля, когда падающее поле поляризовано вдоль оси z , для случая серебряной наночастицы.

Из рисунков 2 и 3 также видно, что поле, создаваемое наночастицей вблизи поверхности, представляет собой ближнее поле излучающего диполя.

2.2 Случай эллиптически поляризованного падающего поля

На рисунке 4 представлена схема рассматриваемой системы в случае эллиптически поляризованного падающего поля, где $E_{0z} = 2000$ В/м и $E_{0y} = 3000$ В/м — амплитуды взаимно перпендикулярных компонент падающего поля.

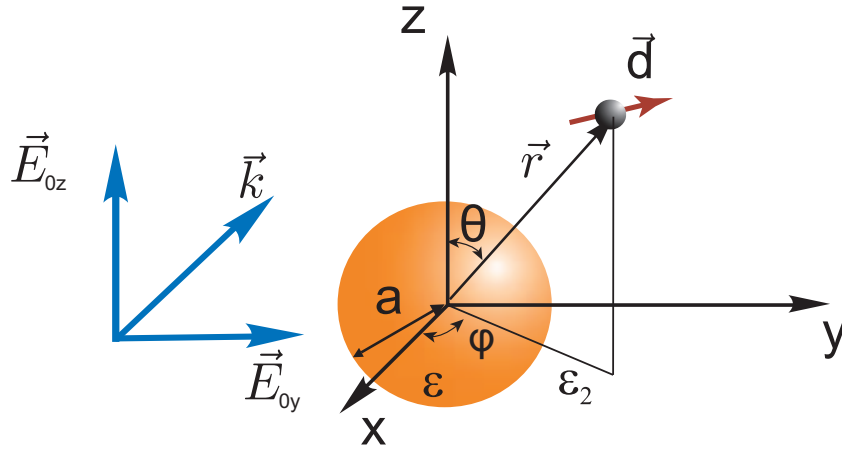


Рис. 4: Схема исследуемой системы в случае эллиптически поляризованного падающего поля. $E_{0z} = 2000$ В/м и $E_{0y} = 3000$ В/м — амплитуды взаимно перпендикулярных компонент падающего поля.

В этом случае рассеянное поле вне частицы является суммой полей, создаваемых двумя диполями, соответственно сонаправленными с перпендикулярными компонентами падающего поля (см. рисунок 4). Таким образом, учитывая выражение (2), в случае, когда падающее поле эллиптически поляризовано, поле вне частицы:

$$\mathbf{E}(r, \theta, \varphi) = E_x(r, \theta, \varphi)\hat{\mathbf{n}}_x + E_y(r, \theta, \varphi)\hat{\mathbf{n}}_y + E_z(r, \theta, \varphi)\hat{\mathbf{n}}_z, \quad (3)$$

где

$$E_x(r, \theta, \varphi) = \cos(\varphi) \sin(\theta) E_{0z} \left(\cos(\theta) + 2 \left(\frac{a}{r} \right)^3 \frac{\varepsilon(\omega) - 1}{\varepsilon(\omega) + 2} \cos(\theta) \right) +$$

$$+ \cos(\varphi) \cos(\theta) E_{0z} \left(\sin(\theta) + \left(\frac{a}{r} \right)^3 \frac{\varepsilon(\omega) - 1}{\varepsilon(\omega) + 2} \sin(\theta) \right) +$$

$$\begin{aligned}
& +e^{i\delta} \cos(\theta) E_{0y} \left(\cos(\theta) + 2 \left(\frac{a}{r} \right)^3 \frac{\varepsilon(\omega) - 1}{\varepsilon(\omega) + 2} \cos(\theta) \right) + \\
& +e^{i\delta} \sin(\theta) E_{0y} \left(\sin(\theta) + \left(\frac{a}{r} \right)^3 \frac{\varepsilon(\omega) - 1}{\varepsilon(\omega) + 2} \sin(\theta) \right), \\
E_y(r, \theta, \varphi) = & \sin(\varphi) \sin(\theta) E_{0z} \left(\cos(\theta) + 2 \left(\frac{a}{r} \right)^3 \frac{\varepsilon(\omega) - 1}{\varepsilon(\omega) + 2} \cos(\theta) \right) + \\
& + \sin(\varphi) \cos(\theta) E_{0z} \left(\sin(\theta) + \left(\frac{a}{r} \right)^3 \frac{\varepsilon(\omega) - 1}{\varepsilon(\omega) + 2} \sin(\theta) \right) + \\
& +e^{i\delta} \sin(\theta) \cos(\varphi) E_{0y} \left(\cos(\theta) + 2 \left(\frac{a}{r} \right)^3 \frac{\varepsilon(\omega) - 1}{\varepsilon(\omega) + 2} \cos(\theta) \right) + \\
& +e^{i\delta} \cos(\theta) \cos(\varphi) E_{0y} \left(\sin(\theta) + \left(\frac{a}{r} \right)^3 \frac{\varepsilon(\omega) - 1}{\varepsilon(\omega) + 2} \sin(\theta) \right), \\
E_z(r, \theta, \varphi) = & \cos(\theta) E_{0z} \left(\cos(\theta) + 2 \left(\frac{a}{r} \right)^3 \frac{\varepsilon(\omega) - 1}{\varepsilon(\omega) + 2} \cos(\theta) \right) - \\
& - \sin(\theta) E_{0z} \left(\sin(\theta) + \left(\frac{a}{r} \right)^3 \frac{\varepsilon(\omega) - 1}{\varepsilon(\omega) + 2} \sin(\theta) \right) + \\
& +e^{i\delta} \sin(\theta) \sin(\varphi) E_{0y} \left(\cos(\theta) + 2 \left(\frac{a}{r} \right)^3 \frac{\varepsilon(\omega) - 1}{\varepsilon(\omega) + 2} \cos(\theta) \right) + \\
& +e^{i\delta} \cos(\theta) \sin(\varphi) E_{0y} \left(\sin(\theta) + \left(\frac{a}{r} \right)^3 \frac{\varepsilon(\omega) - 1}{\varepsilon(\omega) + 2} \sin(\theta) \right),
\end{aligned}$$

где δ — разность фаз взаимно перпендикулярных компонент падающего поля, $\hat{\mathbf{n}}_x$, $\hat{\mathbf{n}}_y$, $\hat{\mathbf{n}}_z$ — единичные векторы декартовой системы координат.

В случае эллиптически поляризованного падающего поля нанополоска влияет не только на величину поля, но и на поляризацию. На рисунке 5 показана поляризация поля, создаваемого наносферой в различных точках около поверхности ($A_1 = (25 \text{ нм}, \frac{\pi}{4}, \frac{\pi}{6})$, $A_2 = (25 \text{ нм}, \frac{\pi}{4}, \frac{\pi}{3})$, $A_3 = (25 \text{ нм}, \frac{\pi}{6}, \frac{\pi}{4})$, $A_4 = (25 \text{ нм}, \frac{\pi}{3}, \frac{\pi}{4})$) в случае, когда разность фаз $\delta = \frac{\pi}{4}$. Видно, что поляризация поля сильно меняется от точки к точке, а в точке A_3 фактически вырождается в линейную.

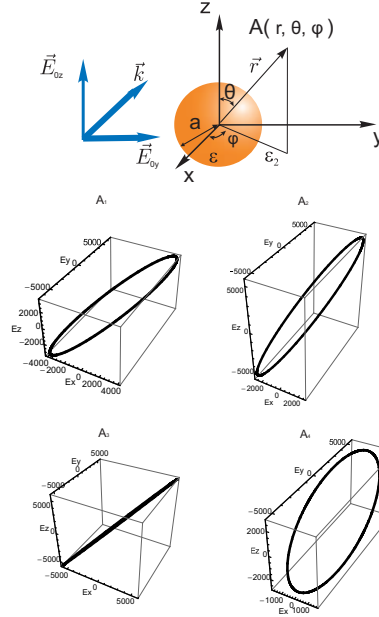


Рис. 5: Поляризация поля, создаваемого наносферой, в случае эллиптически поляризованного падающего поля $\delta = \frac{\pi}{4}$. Координаты точек: $A_1 = (25 \text{ нм}, \frac{\pi}{4}, \frac{\pi}{6})$, $A_2 = (25 \text{ нм}, \frac{\pi}{4}, \frac{\pi}{3})$, $A_3 = (25 \text{ нм}, \frac{\pi}{6}, \frac{\pi}{4})$, $A_4 = (25 \text{ нм}, \frac{\pi}{3}, \frac{\pi}{4})$.

3 Влияние nanoантенны на скорость распада атома

Полная нормированная скорость распада атома, находящегося вблизи наносферы, в точке с координатами (r, θ, ϕ) равна [1, 2]

$$\gamma/\gamma_0 = \{\cos^2 \xi (\gamma/\gamma_0)_{\text{rad}} + \sin^2 \xi (\gamma/\gamma_0)_{\text{tan}}\}, \quad (4)$$

где γ_0 скорость распада атома в свободном пространстве, γ_{rad} скорость распада атома в случае радиальной ориентации дипольного момента относительно nanoантенны, γ_{tan} - в случае тангенциальной ориентации, ξ - угол между дипольным моментом перехода атома и радиус-вектором в точке расположения атома. Учитывая, что

$$\cos^2 \xi = \frac{|E_r|^2}{\sqrt{|E_r|^2 + |E_\theta|^2 + |E_\varphi|^2}}, \quad \sin^2 \xi = \frac{|E_\theta|^2 + |E_\varphi|^2}{\sqrt{|E_r|^2 + |E_\theta|^2 + |E_\varphi|^2}},$$

для полной скорости распада получаем выражение

$$\gamma/\gamma_0 = \frac{|E_r|^2 (\gamma/\gamma_0)_{\text{rad}} + (|E_\theta|^2 + |E_\varphi|^2) (\gamma/\gamma_0)_{\text{tan}}}{\sqrt{|E_r|^2 + |E_\theta|^2 + |E_\varphi|^2}}, \quad (5)$$

где $(\gamma/\gamma_0)_{\text{rad}}$

$$\begin{aligned} \left(\frac{\gamma}{\gamma_0}\right)_{\text{rad}} \xrightarrow{|\mathbf{k}|a \rightarrow 0} & \frac{3}{2(|\mathbf{k}||\mathbf{r}|)^3} \text{Im} \sum_{n=1}^{\infty} (n+1)^2 \left(\frac{a}{|\mathbf{r}|}\right)^{2n+1} \frac{\alpha_n}{a^{2n+1}} + \\ & + \text{Re} \left(1 + \frac{2\alpha_1}{|\mathbf{r}|^3}\right)^2 + O\left(\frac{1}{|\mathbf{k}|a}\right) \end{aligned} \quad (6)$$

и $(\gamma/\gamma_0)_{\text{tan}}$

$$\begin{aligned} \left(\frac{\gamma}{\gamma_0}\right)_{\text{tan}} \xrightarrow{|\mathbf{k}|a \rightarrow 0} & \frac{3}{4(|\mathbf{k}||\mathbf{r}|)^3} \text{Im} \sum_{n=1}^{\infty} n(n+1) \left(\frac{a}{|\mathbf{r}|}\right)^{2n+1} \frac{\alpha_n}{a^{2n+1}} + \\ & + \text{Re} \left(1 - \frac{\alpha_1}{|\mathbf{r}|^3}\right)^2 + O\left(\frac{1}{|\mathbf{k}|a}\right), \end{aligned} \quad (7)$$

где

$$\alpha_n = a^{2n+1} \frac{\varepsilon(\omega) - \varepsilon_2}{\varepsilon(\omega) + \varepsilon_2(n+1)/n}. \quad (8)$$

Первые слагаемые (под знаком суммы) в этих выражениях соответствуют радиационному распаду (связаны с фотонами, улетающими на бесконечность), вторые слагаемые — нерадиационному (связаны с энергией, переходящей в тепло).

На рисунке 6 представлено пространственное распределение нормированной радиационной константы распада атома $(\gamma/\gamma_0)_{\text{rad, tan}}$ в плоскости yz .

Из графиков рисунка 6 и формулы (7) для скорости распада видно, что для атома с тангенциальной к поверхности ориентацией дипольного момента, в случае расположения его в непосредственной близости к поверхности идеально проводящей сферы ($\varepsilon = 0$), радиационная часть скорости распада обращается в нуль. Это связано с тем, что на идеально проводящей поверхности наводится дипольный момент, в точности равный дипольному моменту атома, но имеющий противоположное направление. В результате этого атомы и молекулы с тангенциальной к поверхности ориентацией дипольного момента излучают очень медленно. В общем случае нормально ориентированные к поверхности диполи излучают более интенсивно, чем тангенциальные.

На рисунке 7 показано, как изменяются с расстоянием от сферы радиационная и нерадиационная части скорости распада в случае радиальной ориентации диполя.

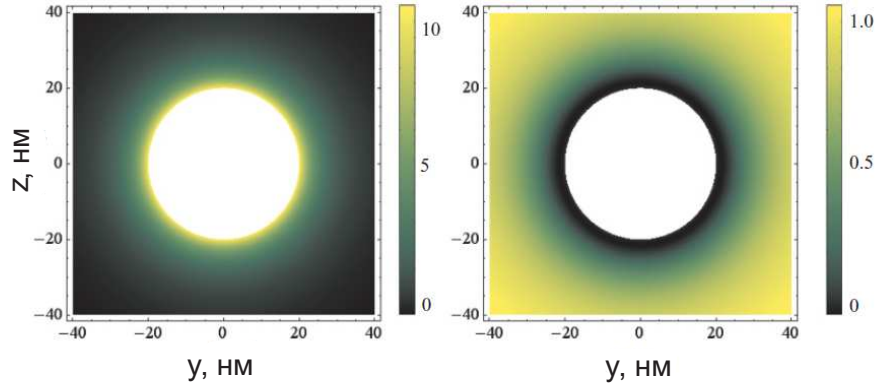


Рис. 6: Пространственное распределение нормированной радиационной константы распада атома $(\gamma/\gamma_0)_{\text{rad, tan}}$ в плоскости yz для радиальной (слева) и тангенциальной (справа) составляющей. Радиус сферы $a = 20$ нм, $\varepsilon = -15.37 + i0.231$ для $\lambda = 632.8$ нм.

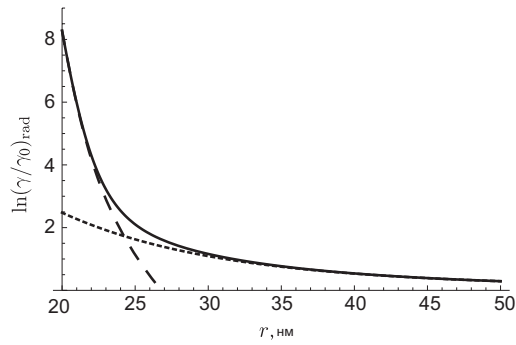


Рис. 7: Радиальные компоненты для радиационной (пунктирная линия), нерadiационной (штриховая линия) и полной (сплошная линия) скорости распада для серебряной сферической наночастицы $a = 20$ нм, $|k|a = 0.2$, $\varepsilon = -15.37 + i0.231$ at $\lambda = 632.8$ нм.

Из графика, представленного на рисунке 7, видно, что на расстоянии меньше 5 нм нерадиационная часть скорости распада превосходит радиационную. В настоящей работе рассматриваются расстояния от 5 нм до 40 нм. Следовательно, учет нерадиационной части скорости распада является оправданным.

Следует также отметить, что для атома вблизи поверхности ($r \rightarrow a$) ряды в формулах (6) и (7) становятся расходящимися. Это означает, что для сферы с потерями скорость нерадиационных распадов стремится к бесконечности, если излучающий атом приближать к поверхности. Этот факт называется гашением излучения. Данное явление часто затрудняет исследование процессов излучения атомов и молекул вблизи металлических наночастиц. Таким образом, точный расчет, контроль и минимизация нерадиационных процессов являются важнейшими условиями развития нанооптики.

4 Расчет спектра резонансной флуоресценции

4.1 Случай линейно поляризованного падающего поля

Начнем с рассмотрения двухуровневого атома, расположенного в точке с радиус-вектором \mathbf{r}_0 и подвергающегося воздействию однородного непрерывного резонансного монохроматического линейно поляризованного лазерного поля. Атом возбуждается в верхнее энергетическое состояние и затем излучает спонтанно по всем направлениям.

Гамильтониан взаимодействия двухуровневого атома с полем излучения (со всеми модами) имеет вид:

$$H = \frac{\hbar\omega}{2} + \sum_{\mathbf{k},\lambda} \hbar\nu_{\mathbf{k}} a_{\mathbf{k},\lambda}^+ a_{\mathbf{k},\lambda} + \sum_{\mathbf{k},\lambda} \hbar g_{\mathbf{k},\lambda} (a_{\mathbf{k},\lambda} \sigma_+ e^{i\mathbf{k}\mathbf{r}_0} + a_{\mathbf{k},\lambda}^+ \sigma_- e^{-i\mathbf{k}\mathbf{r}_0}). \quad (9)$$

Как показано в [10], оператор поля в точке \mathbf{r} , соответствующий флуоресцентному полю излучения, в случае линейно поляризованного падающего поля, в представлении Гейзенберга имеет вид

$$E^+(\mathbf{r}, t) = \frac{\omega^2 d \sin \eta}{4\pi \varepsilon_0 c^2 |\mathbf{r} - \mathbf{r}_0|} \hat{\mathbf{n}}_x \sigma_- \left(t - \frac{|\mathbf{r} - \mathbf{r}_0|}{c} \right), \quad (10)$$

где ω — атомная частота перехода, d — модуль матричного элемента диполя на переходе между двумя уровнями, $\sigma_- \left(t - \frac{|\mathbf{r} - \mathbf{r}_0|}{c} \right)$ — атомный

понижающий оператор в момент времени запаздывания, $\hat{\mathbf{n}}_x$ — единичный вектор оси x декартовой системы координат XYZ , ε_0 — электрическая постоянная, c — скорость света. Выражение 10 справедливо только в дальней зоне, диполь предполагается расположенным в плоскости xz , под углом η к оси z . Видно, что в дальней зоне рассеянное поле поляризовано вдоль оси x .

Соответственно, для $E^-(\mathbf{r}, t)$

$$E^-(\mathbf{r}, t) = \frac{\omega^2 d \sin \eta}{4\pi \varepsilon_0 c^2 |\mathbf{r} - \mathbf{r}_0|} \hat{\mathbf{n}}_x \sigma_+ \left(t - \frac{|\mathbf{r} - \mathbf{r}_0|}{c} \right), \quad (11)$$

где $\sigma_+ \left(t - \frac{|\mathbf{r} - \mathbf{r}_0|}{c} \right)$ — атомный повышающий оператор в момент времени запаздывания.

Согласно теореме Винера-Хинчена, спектр мощности излучения выражается через двухвременную корреляционную функцию поля излучения

$$S(\omega_0) = \frac{1}{2\pi} \lim_{T \rightarrow \infty} \frac{1}{T} \int_0^T dt \int_0^T dt' \langle E^-(t) E^+(t') \rangle e^{-i\omega_0(t-t')} \quad (12)$$

Как показано в [10],

$$S(\mathbf{r}, \omega_0) = \frac{1}{\pi} \mathbf{Re} \int_0^\infty d\tau \langle E^{(-)}(\mathbf{r}, t) E^{(+)}(\mathbf{r}, t + \tau) \rangle e^{i\omega_0 \tau}. \quad (13)$$

Здесь сделано допущение, что поле в стационарном состоянии (при $t \rightarrow \infty$) является статистически стационарным, то есть при $t \rightarrow \infty$ $\langle E^{(-)}(\mathbf{r}, t) E^{(+)}(\mathbf{r}, t + \tau) \rangle$ зависит только от разницы значений времени τ .

Из формул (10) и (11) следует, что

$$\langle E^{(-)}(\mathbf{r}, t) E^{(+)}(\mathbf{r}, t + \tau) \rangle = \sin(\eta) I_0(\mathbf{r}) \langle \sigma_+(t) \sigma_-(t + \tau) \rangle, \quad (14)$$

где $I_0(\mathbf{r}) = \left(\frac{\omega^2 d}{4\pi \varepsilon_0 c^2 |\mathbf{r} - \mathbf{r}_0|} \right)^2$. Таким образом, вычисление спектра сводится к вычислению двухвременной корреляционной функции $\langle \sigma_+(t) \sigma_-(t + \tau) \rangle$, которую можно вычислить с помощью квантовой теоремы регрессии [10], зная соответствующие одновременные корреляционные функции. Ключевое предположение квантовой теоремы регрессии (теоремы Онсагера—Лакса) является то, что оператор плотности окружения атома не связан с атомным оператором плотности в начальный момент времени $t = 0$. Это предположение обычно именуется Марковским приближением. Таким образом, нам необходимо знать $\langle \sigma_+(t) \rangle = \rho_{12}(t) \exp(i\omega t)$, $\langle \sigma_-(t) \rangle = \rho_{21}(t) \exp(-i\omega t)$, $\langle \sigma_z(t) \rangle = [\rho_{22}(t) - \rho_{11}(t)]$.

Уравнение движения для оператора плотности возбуждаемого и затухающего атома (уравнение Линблада) в представлении взаимодействия имеет вид

$$\dot{\rho} = -\frac{i}{\hbar}[V, \rho] - \frac{\gamma}{2}(\sigma_+\sigma_-\rho - 2\sigma_-\rho\sigma_+ + \rho\sigma_+\sigma_-), \quad (15)$$

где γ скорость распада атома, V — гамильтониан взаимодействия в приближении вращающейся волны. Предполагается, что атом взаимодействует с тепловым резервуаром, причем среднее число фотонов равно нулю.

Гамильтониан взаимодействия двухуровневого атома с возбуждающим линейно поляризованным резонансным монохроматическим полем в представлении взаимодействия имеет вид

$$V = \hbar g(\sigma_+a + a^+\sigma_-), \quad (16)$$

где g — константа взаимодействия поля с атомом.

Собственные состояния гамильтониана (16) имеют вид

$$|\pm, n\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|2, n\rangle \pm |1, n+1\rangle), \quad (17)$$

где n соответствует состоянию поля, в котором n фотонов. Собственные значения, соответствующие $|\pm, n\rangle$ соответственно равны $+g\sqrt{n+1}$ и $-g\sqrt{n+1}$.

Таким образом, ранее вырожденные состояния $|1, n+1\rangle$ и $|2, n\rangle$ расщепляются на дублеты "одетых" состояний, разделенных частотой $2g\sqrt{n}$. Такое расщепление называется динамическим Штарковским расщеплением. Этим объясняется наличие трех пиков (триплет Моллоу [7]) в спектре резонансной флуоресценции (см. рисунок 8).

Уравнение 15 решается в полуклассическом приближении, то есть гамильтониан взаимодействия возбуждающего линейно поляризованного поля в представлении взаимодействия имеет вид

$$V = \frac{\hbar\Omega(\mathbf{r})}{2}(|2\rangle\langle 1| + |1\rangle\langle 2|), \quad (18)$$

где $\Omega(\mathbf{r}) = \frac{|\mathbf{E}(\mathbf{r})|d}{\hbar}$ — частота Раби (диполь направлен по полю).

"Одетые" состояния для гамильтониана 18 имеют вид

$$|\pm\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|2\rangle \pm |1\rangle), \quad (19)$$

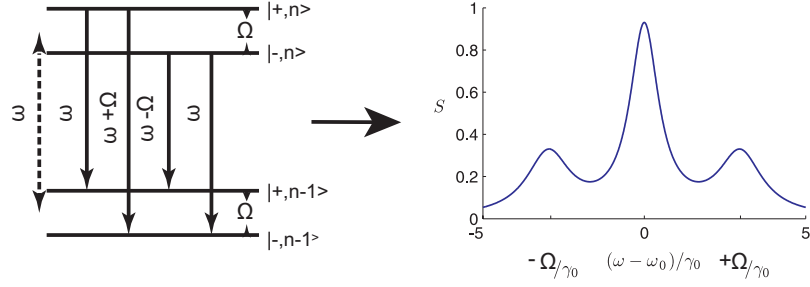


Рис. 8: Схема расщепленных уровней двухуровневого атома ("одетые" состояния) и спектры резонансной флуоресценции атома в сильном поле в отсутствие наночастицы ($\Omega > \gamma_0$) (триплет Моллоу). В данном случае индекс n — энергия уровня, выраженная в фотонах моды ω поля.

Решая уравнение Линблада в базе одетых состояний в полуклассическом случае, для корреляционной функции (при $t \rightarrow \infty$) получаем [10]

$$\begin{aligned} \langle E^{(-)}(\mathbf{r}, t) E^{(+)}(\mathbf{r}, t + \tau) \rangle &= I_0(\mathbf{r}) \sin^2 \eta e^{-i\omega\tau} \left(\frac{\Omega^2(\mathbf{r})}{\gamma^2(\mathbf{r}) + 2\Omega^2(\mathbf{r})} \right) \times \\ &\times \left[\frac{\gamma^2(\mathbf{r})}{\gamma^2(\mathbf{r}) + 2\Omega^2(\mathbf{r})} + \frac{e^{-\gamma\tau/2}}{2} + \frac{e^{-3\gamma\tau/4}}{4} \{ e^{-i\mu(\mathbf{r})\tau} (P(\mathbf{r}) + \right. \\ &\quad \left. + iQ(\mathbf{r})) + e^{i\mu(\mathbf{r})\tau} (P(\mathbf{r}) - iQ(\mathbf{r})) \} \right], \quad (20) \end{aligned}$$

где $I_0(\mathbf{r}) = [(\omega^2 d)/(c^2 |\mathbf{r}|)]^2$, предполагается, что наблюдатель находится в точке с координатами (r, θ, ϕ) , причем вектор $\mathbf{r} - \mathbf{r}_0$ параллелен оси z . Кроме того,

$$P(\mathbf{r}) = \frac{2\Omega^2(\mathbf{r}) - \gamma^2(\mathbf{r})}{2\Omega^2(\mathbf{r}) + \gamma^2(\mathbf{r})}, \quad Q(\mathbf{r}) = \frac{\gamma(\mathbf{r})}{4\mu(\mathbf{r})} \frac{10\Omega^2(\mathbf{r}) - \gamma^2(\mathbf{r})}{2\Omega^2(\mathbf{r}) + \gamma^2(\mathbf{r})}, \quad (21)$$

где

$$\mu(\mathbf{r}) = \left(\Omega^2(\mathbf{r}) - \frac{\gamma^2(\mathbf{r})}{16} \right)^{1/2}.$$

Следовательно, исходя из (13), получаем выражение для спектра резонансной флуоресценции

$$\begin{aligned} S(\mathbf{r}, \omega_0) &= I_0(\mathbf{r}) \sin^2(\eta) \left(\frac{\Omega^2(\mathbf{r})}{\gamma^2(\mathbf{r}) + 2\Omega^2(\mathbf{r})} \right) \left[\frac{\gamma^2(\mathbf{r})}{\gamma^2(\mathbf{r}) + 2\Omega^2(\mathbf{r})} \delta(\omega - \omega_0) + \right. \\ &\quad \left. + \frac{\gamma(\mathbf{r})}{(\omega - \omega_0)^2} + \frac{\alpha_+(\mathbf{r})}{(\omega + \mu(\mathbf{r}) - \omega_0)^2} + \frac{\alpha_-(\mathbf{r})}{(\omega - \mu(\mathbf{r}) - \omega_0)^2} \right], \quad (22) \end{aligned}$$

где

$$\alpha_{\pm} = \frac{3\gamma(\mathbf{r})}{4}P(\mathbf{r}) \pm (\omega \pm \mu(\mathbf{r}) - \omega_0)Q(\mathbf{r}). \quad (23)$$

На рисунке 9 показан нормированный на I_0 спектр резонансной флуоресценции двухуровневого атома, расположенного в плоскости yz , при фиксированном r для различных значений θ .

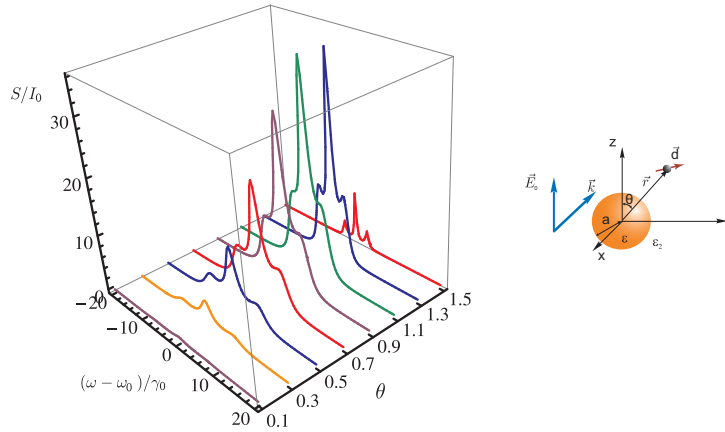


Рис. 9: Нормированный на I_0 спектр резонансной флуоресценции двухуровневого атома, расположенного в плоскости yz , при фиксированном $r = 30$ нм для различных значений $\theta=0.1 - 1.5$ рад, $\gamma_0 = 20$ МГц.

Из графиков рисунка 9 видно, что спектр зависит от угла θ . Кроме того, минимум достигается при углах $\theta = 0$ рад и $\theta = 1.57$ рад, что объясняется тем, что диполь в дальней зоне не излучает в направлении ориентации. Максимум достигается при угле $\theta = 1.1$ рад.

Теперь проанализируем, как зависит спектр резонансной флуоресценции от r при фиксированном угле θ . На рисунке 10 представлены графики спектров резонансной флуоресценции при фиксированных углах $\theta = 0.3$ рад и $\theta = 1.3$ рад для различных значений r .

Рассмотрим случай $\theta = 0.3$ рад. При увеличении расстояния от атома до сферы поле уменьшается до значения $|\mathbf{E}_0|$ поля в свободном пространстве. Скорость распада атома также уменьшается. Из графика рисунка 7 видно, что на расстоянии, меньшем 5 нм, нерадиационная часть скорости распада превосходит радиационную и происходит гашение флуоресценции, а на расстоянии, большем 7 нм, радиационная часть скорости распада значительно превосходит нерадиационную. С увеличением расстояния графики приближаются к спектру атома в свободном пространстве.

Рассмотрим случай $\theta = 1.3$ рад. В данном случае радиальная компонента поля примерно равна нулю. Таким образом, диполь фактически

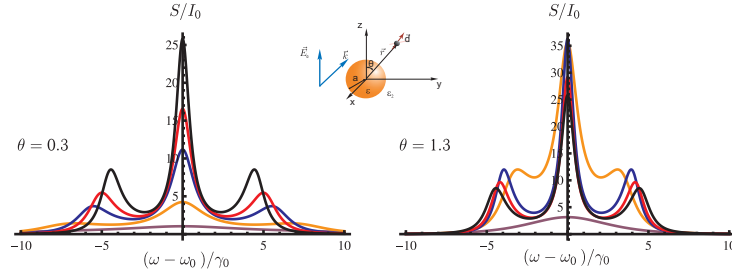


Рис. 10: Нормированный на I_0 спектр резонансной флуоресценции двухуровневого атома, расположенного в плоскости yz , при фиксированных углах $\theta = 0.3$ рад (слева) и $\theta = 1.3$ рад (справа) для различных значений. Координата r равна 25 нм (фиолетовая линия 1), 30 нм (оранжевая линия 2), 40 нм (синяя линия 3), 50 нм (красная линия 4). Черная линия 5 соответствует атому в свободном пространстве. $\gamma_0 = 20$ МГц.

имеет только тангенциальную составляющую и при приближении к поверхности происходит гашение флуоресценции. При увеличении расстояния между атомом и поверхностью графики также стремятся к спектру атома в свободном пространстве, но в данном случае они сходятся сверху и снизу.

4.2 Случай эллиптически поляризованного падающего поля

Перейдем к рассмотрению спектра резонансной флуоресценции в случае эллиптически поляризованного падающего поля. Выше было показано, что в случае эллиптически поляризованного падающего поля, рассеянное частицей поле также эллиптически поляризовано, причем поляризация сильно изменяется от точки к точке. В данном случае, в отличие от случая линейной поляризации, в котором возбуждаются переходы с $\Delta m = 0$, в атоме возбуждаются переходы с $\Delta m = \pm 1$.

Оператор дипольного момента перехода представим в виде

$$\mathbf{d} = \mathbf{d}_1 + \mathbf{d}_2, \quad (24)$$

причем $(E_i(\mathbf{r})\mathbf{d}_j) = \delta_{ij}|E_i(\mathbf{r})|d$, ($i = 1, 2$), где $E_i(\mathbf{r})$ — главные оси эллипса поляризации \mathbf{e} в точке с радиус-вектором \mathbf{r} , модуль матричного элемента оператора дипольного момента перехода принимаем таким же, как и в случае перехода $\Delta m = 0$. То есть случай взаимодействия эллиптически поляризованного поля с двухуровневым атомом фактически сводится к взаимодействию поля с двумя перпендикулярными диполями.

Матричные элементы оператора дипольного момента в случае, когда поляризация левая (переход в верхнее состояние с $\Delta m = -1$)

$$\begin{aligned}\langle i|\mathbf{d}_1|j\rangle &= \delta_{ij}d, \\ \langle i|\mathbf{d}_2|j\rangle &= (-1)^i\delta_{ij}d.\end{aligned}\quad (25)$$

Аналогично для случая с $\Delta m = +1$

$$\begin{aligned}\langle i|\mathbf{d}_1|j\rangle &= \delta_{ij}d, \\ \langle i|\mathbf{d}_2|j\rangle &= -(-1)^i\delta_{ij}d.\end{aligned}\quad (26)$$

Исходя из (9) и (10) в случае эллиптически поляризованного падающего поля, оператор флуоресцентного поля для перехода с $\Delta m = -1$ имеет вид

$$E^+(\mathbf{r}, t) = \frac{\omega^2 d}{4\pi\epsilon_0 c^2 |\mathbf{r} - \mathbf{r}_0|} (\sin \eta_1 \hat{\mathbf{n}}_{1x} - i \sin \eta_2 \hat{\mathbf{n}}_{2x}) \sigma_- \left(t - \frac{|\mathbf{r} - \mathbf{r}_0|}{c} \right), \quad (27)$$

где η_1 и η_2 — углы между главными осями эллипса поляризации и осью z , $\hat{\mathbf{n}}_{1x}$ и $\hat{\mathbf{n}}_{2x}$ — единичные векторы, лежащие в плоскости xy , направленные вдоль проекций главных осей эллипса поляризации на плоскость xy .

Соответственно, для E^- имеем

$$E^-(\mathbf{r}, t) = \frac{\omega^2 d}{4\pi\epsilon_0 c^2 |\mathbf{r} - \mathbf{r}_0|} (\sin \eta_1 \hat{\mathbf{n}}_{1x} + i \sin \eta_2 \hat{\mathbf{n}}_{2x}) \sigma_+ \left(t - \frac{|\mathbf{r} - \mathbf{r}_0|}{c} \right). \quad (28)$$

Гамильтониан взаимодействия поля с левой поляризацией в случае перехода ($\Delta m = -1$) имеет вид [12]

$$V = \frac{\hbar\Omega(\mathbf{r})}{2} (|2\rangle\langle 1| + |1\rangle\langle 2|), \quad (29)$$

где $\Omega(\mathbf{r}) = \frac{(|\mathbf{E}_1(\mathbf{r})| + |\mathbf{E}_2(\mathbf{r})|)d}{\hbar}$, $|\mathbf{E}_1(\mathbf{r})|$ и $|\mathbf{E}_2(\mathbf{r})|$ главные полуоси эллипса поляризации.

Уравнение Линблада для случая эллиптической поляризации

$$\dot{\rho} = -\frac{i}{\hbar}[V, \rho] - \frac{\gamma_1 + \gamma_2}{2} (\sigma_+ \sigma_- \rho - 2\sigma_- \rho \sigma_+ + \rho \sigma_+ \sigma_-), \quad (30)$$

где γ_1 и γ_2 скорости релаксации для диполей, направленных соответственно по главным осям поляризации.

Следовательно, для спектра резонансной флуоресценции получаем:

$$\begin{aligned}
S(\mathbf{r}, \omega_0) = & I_0(\sin^2(\eta_1) + \sin^2(\eta_2))(\mathbf{r}) \times \\
& \times \left(\frac{\Omega^2(\mathbf{r})}{\gamma^2(\mathbf{r}) + 2\Omega^2(\mathbf{r})} \right) \left[\frac{\gamma^2(\mathbf{r})}{\gamma^2(\mathbf{r}) + 2\Omega^2(\mathbf{r})} \delta(\omega - \omega_0) + \frac{\gamma(\mathbf{r})}{(\omega - \omega_0)^2} + \right. \\
& \left. + \frac{\alpha_+(\mathbf{r})}{(\omega + \mu(\mathbf{r}) - \omega_0)^2} + \frac{\alpha_-(\mathbf{r})}{(\omega - \mu(\mathbf{r}) - \omega_0)^2} \right], \quad (31)
\end{aligned}$$

где $\gamma = \gamma_1 + \gamma_2$, $\Omega(\mathbf{r}) = \frac{(|\mathbf{E}_1(\mathbf{r})| + |\mathbf{E}_2(\mathbf{r})|)d}{\hbar}$

На рисунке 11 представлены спектры резонансной флуоресценции для различных поляризаций падающего поля в точке с координатами (30 нм, $\frac{\pi}{4}$, $\frac{\pi}{4}$) для различных значений разности фаз $\delta = \frac{\pi}{4}$, $\frac{\pi}{3}$, $\frac{\pi}{2}$.

Из рисунка 11 следует, что спектр резонансной флуоресценции сложным образом зависит от поляризации падающего поля.

5 Спектр резонансной флуоресценции в случае N двухуровневых атомов, расположенных вокруг нанопластины

Перейдем к рассмотрению спектра резонансной флуоресценции нескольких двухуровневых атомов, расположенных вокруг наносферы. Пусть падающее поле линейно поляризованное. Сделаем допущение о том, что атомы не взаимодействуют друг с другом.

Расположим атомы вокруг сферы так, что потенциальная энергия взаимодействия равных зарядов, находящихся в точках расположения атомов, минимальна. Данная задача носит название задачи Томсона, численное решение которой получено, например в [13]. Дипольные моменты переходов атомов сонаправлены с полем в точках расположения атомов.

На рисунке 12 представлены спектры резонансной флуоресценции в случаях 10, 20 и 50 атомов для различных значений r от 30 нм до 40 нм для двух положений наблюдателя (в дальней зоне на оси z в положительном направлении и на оси y в положительном направлении).

Из графиков рисунка 12 видно, что в случае, когда наблюдатель находится на оси y (в направлении, перпендикулярном поляризации падающего поля) спектр четче. Кроме того, видно, что с увеличением количества атомов спектр сглаживается.

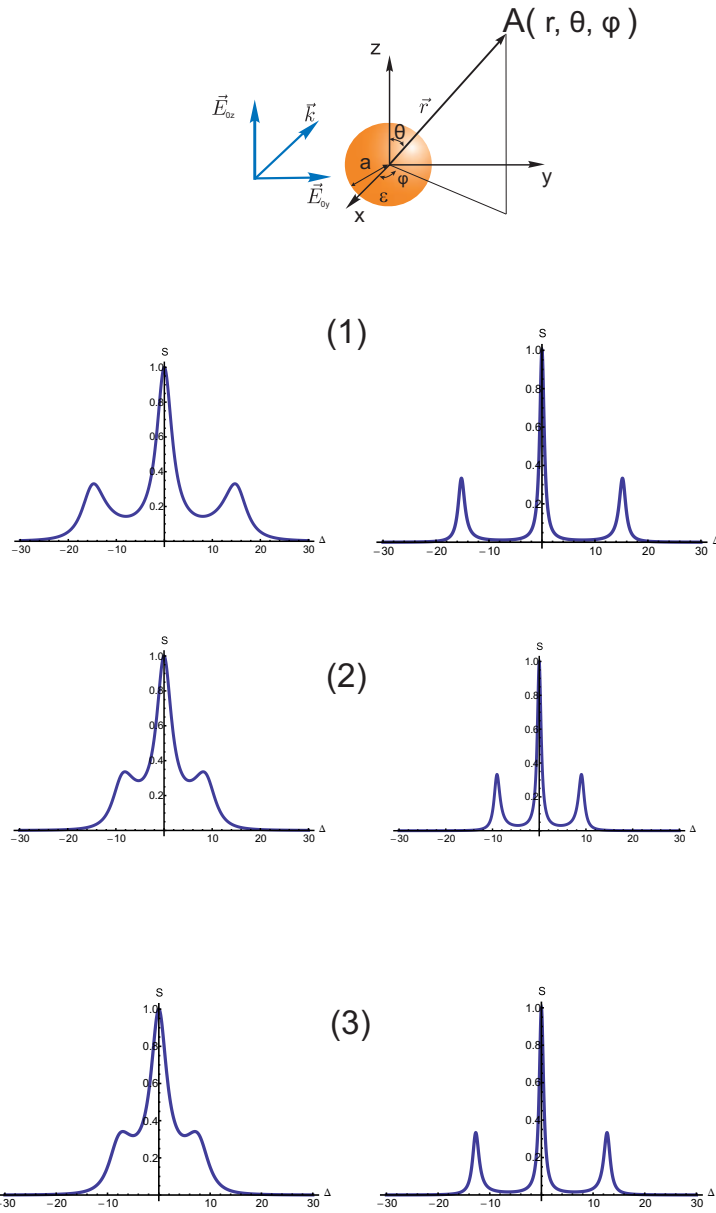


Рис. 11: Спектр резонансной флуоресценции в случае: 1) атом в точке $(30 \text{ нм}, \frac{\pi}{4}, \frac{\pi}{4})$ 2) атом в точке $(30 \text{ нм}, \frac{\pi}{4}, \frac{\pi}{4})$; 3) атом в точке $(30 \text{ нм}, \frac{\pi}{4}, \frac{\pi}{4})$. $\delta = \frac{\pi}{4}$. Справа — в отсутствие наночастицы, слева — в случае с наночастицей.

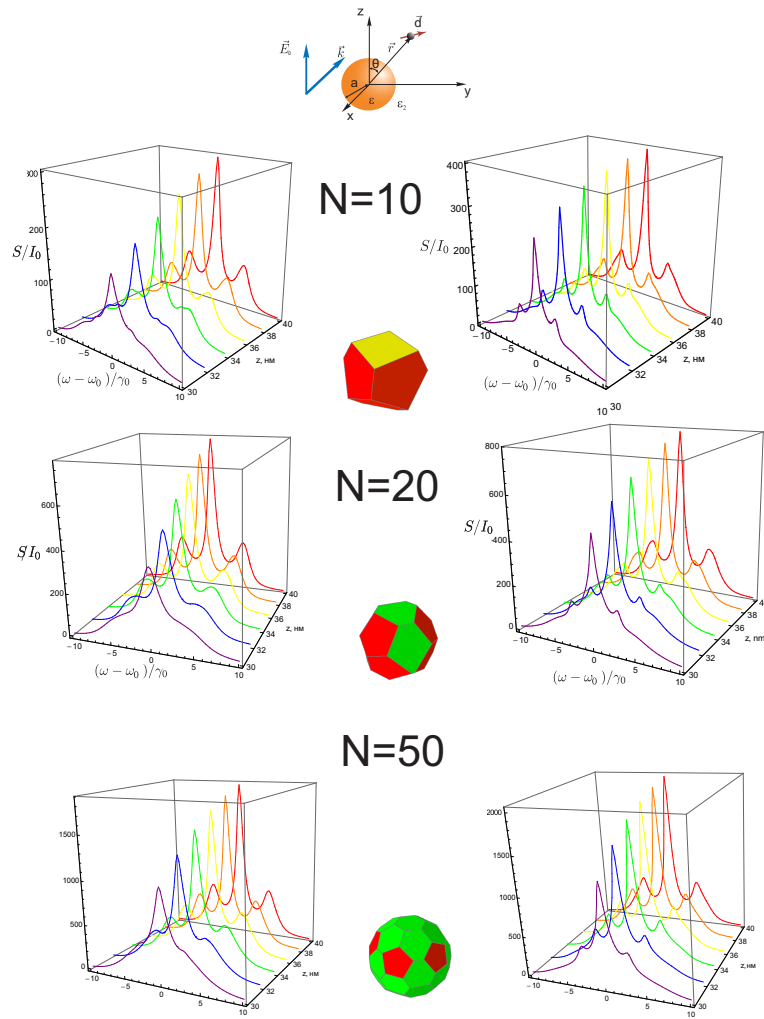


Рис. 12: Спектр резонансной флуоресценции в случае 10, 20 и 50 двухуровневых атомов, расположенных вокруг наносферы на расстояниях от начала координат $r = 30$ нм (фиолетовая линия), $r = 32$ нм (синяя линия), $r = 34$ нм (зеленая линия), $r = 36$ нм (желтая линия), $r = 40$ нм (красная линия). Атомы расположены в вершинах представленных на рисунке многогранников. Слева — наблюдатель в дальней зоне на оси z в положительном направлении, справа — наблюдатель в дальней зоне на оси y в положительном направлении. — (справа).

6 Заключение

В настоящей работе изучено влияние серебряной металлической наноантенны на спектр резонансной флуоресценции двухуровневого атома. Для этого рассчитано поле, создаваемое наноантенной, для линейно поляризованного и эллиптически поляризованного падающего поля. Показано, что наноантенна влияет как на величину рассеянного поля, так и на его поляризацию. В случае однородного падающего поля наночастица ведет себя как диполь (как два перпендикулярных диполя в случае эллиптически поляризованного падающего поля).

Исследована зависимость скорости распада атома от положения относительно наноантенны. Скорость релаксации атома, находящегося в определенной точке около наносферы, зависит от того, как ориентирован дипольный момент перехода. Дипольный момент перехода атома принимается направленным по полю в точке расположения атома.

Вследствие того, что наноантенна влияет на величину и поляризацию поля, а так же на скорость распада атома, наноантенна существенно влияет на спектр резонансной флуоресценции атома. Исследована зависимость спектра от положения атома относительно наноантенны. На расстояниях меньше 7 нм происходит гашение флуоресценции.

Кроме того, рассчитан спектр резонансной флуоресценции для случая 10, 20, 50 невзаимодействующих атомов, расположенных вокруг наноантенны, для двух положений наблюдателя. Данный случай интересен тем, что в эксперименте, как правило, имеют дело не с одним атомом, а с несколькими атомами. В случае, когда наблюдатель находится в дальней зоне на оси y (перпендикулярно поляризации падающего поля), спектр четче. Кроме того, с увеличением количества атомов спектр сглаживается.

Следующим шагом в исследовании влияния наноантенны на спектр резонансной флуоресценции будет изучение спектра резонансной флуоресценции для нескольких взаимодействующих друг с другом атомов в присутствии наноантенны.

Список литературы

- [1] Климов В.В. Наноплазмоника. М.: ФИЗМАТЛИТ. 2009.
- [2] V. V. Klimov, *Nanoplasmonics: Fundamentals and applications* (Pan Stanford Publishing, Singapore, 2012).
- [3] P. Anger, P. Bharadwaj, and L. Novotny, *Phys. Rev. Lett.* **96**, 113002 (2006).
- [4] L. Novotny and N. van Hulst, *Nat. Photonics* **5**, 83 (2011).
- [5] Hecht B., Novotny L.. *Principles of Nano-Optics*. Cambridge University Press, Cambridge, (2006).
- [6] S. Kühn, U. Hakanson, L. Rogobete, and V. Sandoghdar, *Phys. Rev. Lett.* **97**, 017402 (2006).
- [7] B. R. Mollow, *Phys. Rev.* **178**, 1969 (1969).
- [8] H. J. Kimble and L. Mandel, *Phys. Rev. A* **13**, N 6, 2123 (1976).
- [9] Y. Gu, L. Huang, O. J. F. Martin, and Q. Gong, *Phys. Rev. B* **81**, 193103 (2010).
- [10] Скалли М.О., Зубайри М.С. Квантовая оптика. / Под ред. проф. В.В. Самарцева. М.: Физматлит. (2003).
- [11] Y. V. Vladimirova, V. V. Klimov, V. M. Pastukhov, V. N. Zadkov, *Phys. Rev. A* **85**, 053408 (2012).
- [12] M. Sukharev and A. Nitzan, *Phys. Rev. A* **84**, 043802 (2011).
- [13] <http://www-wales.ch.cam.ac.uk/wales/CCD/Thomson/table.html>
(The Cambridge Cluster Database)