

МГУ им. М.В. Ломоносова
Физический факультет
Кафедра Общей физики и волновых процессов

Курсовая работа
Флуоресценция двух- и трехуровневых атомов вблизи
сферической наноантенны

Выполнил
студент 5 курса
Лобов Александр

Научный руководитель
Владимилова Юлия Викторовна

Рецензент
Коновко Андрей Андреевич

Москва, 2011

Содержание

1	Введение	3
2	Способы создания наноструктур	5
3	Расчет материальных параметров	8
4	Расчет поля	9
5	Скорость излучательной релаксации	10
6	Спектр флуоресценции	13
6.1	Двухуровневое приближение	13
6.2	Трехуровневое приближение	16
7	Заключение	19
A	Расчет усиления флуоресценции при помощи диадной функции Грина	19

1 Введение

Настоящая курсовая работа посвящена теоретическому изучению влияния оптической наноантенны на флуоресценцию квантовой системы, расположенной вблизи неё. В качестве квантовой системы можно рассматривать одиночный атом, молекулу, квантовую точку, а также любой квантовый объект, структуру уровней которого можно описывать в 2-х или 3-х уровневом приближении. Далее, для краткости, будем понимать под атомом любую подобную квантовую систему.

Наноструктуры, основанные на использовании поверхностных плазмонов, стали на сегодняшний день ключевым компонентом в современных нанотехнологиях. Наноантенны являются одним из примеров подобных наноструктур [1, 2, 3], которые эффективно концентрируют энергию падающего оптического излучения в нанометровой области, а также производят обратный эффект: высвобождают энергию наноизлучателя (например, квантовой точки или молекулы) в виде электромагнитного излучения. Одно из важных потенциальных применений оптических антенн — их использование в спектроскопии отдельных органических молекул и биологических наноструктур [4, 5].

Оптическую антенну можно рассматривать как аналог обычной радиоантенны в нанометровом масштабе [1, 2]. В то время как в диапазоне радиоволн антенна осуществляет преобразование электромагнитного излучения в электрический ток, в оптическом диапазоне наноантенна преобразует дальнее электромагнитное поле в ближнее поле. На рис. 1 схематически изображена оптическая антенна, состоящая из металлического стержня с маленьким участком другого материала. В поле падающего излучения антенна может эффективно концентрировать свет в зазоре, вызывая сильное взаимодействие света с материалом внутри зазора. Электрическое поле световой волны действует на электроны внутри металла, вызывая коллективные колебания, называемые поверхностными плазмонами [6]. На резонансной частоте заряды смещаются очень сильно, что приводит к большим световым интенсивностям внутри зазора. Получаемое усиленное взаимодействие света с веществом внутри зазора можно использовать для создания миниатюрных спектроскопических инструментов [7] для изучения отдельных молекул и сверхчувствительных биосенсоров. Большие интенсивности света, получаемые при небольшой мощности падающего на антенну излучения, можно использовать для нелинейного преобразования частоты и высокоскоростных оптических переключателей. Если в зазор поместить полупроводник, можно создать высокоскоростной малозумный фотодетектор. В работе [1] предложено использовать оптические антенны для считывания штрих-кодов нанометрового масштаба. Помещая отдельный квантовый излучатель внутрь зазора, можно создать однофотонный источник излучения. Устройства, использующие оптические антенны, по сравнению с устройствами на антеннах радиодиапазона должны быть намного быстрее и меньше, учитывая большие

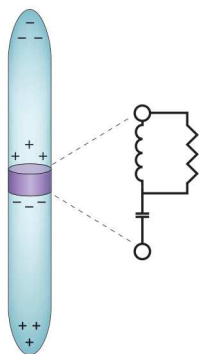


Рис. 1: Схема оптической антенны[1].

частоты и малые длины волн световой волны. Также разработка наноантенн тесно связана с созданием метаматериалов [8, 9, 10, 11], исследованию которых сегодня уделяется большое внимание. Эффект локального усиления электромагнитного поля можно использовать для введения электромагнитной энергии в оптоэлектронные устройства субволновых размеров. Использование металлических наночастиц в качестве устройства ближнепольной микроскопии потенциально сочетает высокое оптическое разрешение вместе с хорошим пропусканием света и имеет некоторые преимущества перед уже существующими методами микроскопии ближнего поля [12]. Свойства оптических антенн сейчас активно исследуются, проводятся попытки использовать методы, применяемые для описания антенн в радиодиапазоне, для описания оптических антенн [13].

Основные области возможного применения оптических наноантенн перечислены ниже:

- спектроскопия отдельных молекул,
- биосенсоры,
- оптические переключатели,
- считывание штрих-кодов,
- фотодетекторы,
- однофотонные источники излучения.

В настоящее время большое число работ уделяет внимание изучению влияния плазмонных наночастиц на излучательные свойства атомов. Можно отметить такие экспериментальные работы, как [14, 15, 16, 17], а также теоретические работы [18, 19, 20, 21, 22, 23, 24, 6, 25]. В данных работах изучается влияние плазмонных наночастиц на такие свойства атома, как, например, скорость излучательной релаксации. Однако, влияние наноантенны на спектр флуоресценции практически не исследовано. Можно отметить работу [5], где теоретически рассматривается спектр флуоресценции отдельной молекулы в двухуровневом приближении, расположенной вблизи наноантенны, а также работу [26], в которой экспериментально и теоретически рассматривается изменение спектра флуоресценции с помощью наноантенны.

В качестве наноантенны рассмотрим сферическую металлическую частицу радиусом a (рис. 2). Сфера находится в окружающей среде с диэлектрической проницаемостью ε_2 в электромагнитном поле $\mathbf{E}_0 e^{-i\omega t}$, $\mathbf{E}_0 = \{0, 0, E_{0z}\}$, диэлектрическая проницаемость материала сферы ε . В качестве материала сферы будем рассматривать золото или серебро. Эти материалы являются стандартными для создания наноантенн, так как обладают сравнительно небольшими потерями в оптическом диапазоне.

Флуоресценция атома непосредственно зависит от интенсивности падающего на систему электромагнитного поля, а также от скорости излучательной релаксации, которая может изменяться в неоднородном пространстве [27], т.е. вблизи наноантенны. Поэтому задачу исследования флуоресценции одиночного атома вблизи наноантенны можно разделить на три подзадачи:

- расчет распределения электромагнитного поля вблизи наноантенны;
- изучение изменения скорости излучательной релаксации атома вблизи наноантенны;
- изучение изменения интенсивности флуоресценции и формы её спектра.

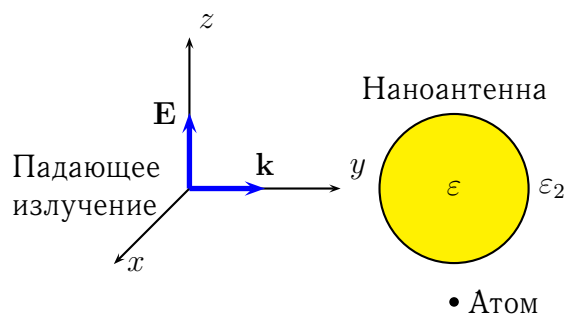


Рис. 2: Схема исследуемой системы.

Курсовая работа состоит из введения, пяти разделов и заключения. В разделе 2 кратко описываются основные способы, используемые сегодня при производстве наноструктур, в том числе и наноантенн. В разделе 3 описывается расчет материальных параметров, используемых в дальнейших вычислениях. В разделе 4 речь идет о расчете электромагнитного поля близи сферической наноантенны, находящейся в поле падающего лазерного излучения. Раздел 5 посвящен изучению поведения скорости излучательной релаксации атома около сферической наночастицы. В разделе 6 обсуждается форма спектра резонансной флуоресценции атома, расположенного рядом со сферической наноантенной. Атом рассматривается как в двухуровневом, так и в трехуровневом приближении. И, наконец, в приложении А приведен пример расчета усиления и гашения флуоресценции атома вблизи сферической наночастицы с использованием формализма диадной функции Грина.

2 Способы создания наноструктур

В настоящее время существует целый ряд методов синтеза диэлектрических, полупроводниковых и металлических наночастиц и наноструктур [8, 6]. Совокупность этих методов уже сейчас позволяет синтезировать наночастицы с хорошо определенной формой и размерами, что важно для нанотехнологических приложений. При этом, как и в других нанотехнологических подходах, существуют два принципиально важных пути. Один из них, метод «снизу вверх (bottom-up)» основан на синтезировании наночастиц и наноструктур посредством добавления единичных атомов. Другой подход, метод «сверху вниз (top-down)» основан на вырезании тем или иным способом заданной наночастицы или наноструктуры из макроскопически большого куска вещества. Рассмотрим наиболее важные методы синтеза металлических наноструктур.

Электронно-лучевая и ионно-лучевая литография. Слово литография происходит от греческих слов lithos (камень) и grapho (писать). Раньше это слово использовалось для обозначения печати с помощью рельефных камней. В настоящее время этот термин имеет более широкое значение. Тем не менее, основным элементом современных литографических методов является рельефная маска, которая может быть материальной (кристалл) или нематериальной (стоячая световая волна). Существует много способов приготовления таких масок и синтеза с их помощью наночастиц и наноструктур, но мы остановимся только на самых важных из них.

В рамках электронно-лучевой литографии электронный луч сканирующего электронного микроскопа используется для облучения заданных областей на положительном резисте, который, в свою очередь, расположен на подложке. Именно эти облученные области

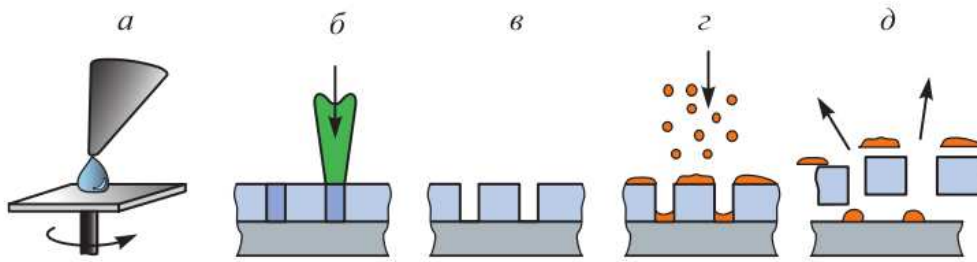


Рис. 3: Схема, иллюстрирующая процесс электронно-лучевой нанолитографии: а — нанесение тонкого слоя резиста на подложку; б — облучение заданных областей резиста электронным пучком; в — удаление облученных участков резиста; г — напыление слоя металла; д — удаление остатков резиста и металла на нем [6].

определяют форму наночастиц. На следующем этапе эти облученные области резиста удаляются с помощью химических процессов. На получаемую таким образом маску напыляется металл необходимой толщины. На завершающей стадии процесса маска с металлом на ней удаляется, в результате чего на подложке остаются металлические наночастицы или наноструктуры.

Ионно-лучевая литография в целом аналогична электронно-лучевой. Основным отличием является то, что пучок ионов лучше фокусируется в среде за счет большой массы ионов, и разрушение связей в резисте происходит быстрее, чем в случае электронно-лучевой литографии. Оба метода являются комбинацией «top-down» технологии при изготовлении маски и «bottom-up» технологии при напылении металла.

Кроме того, ионный пучок может быть использован для непосредственного нанесения атомов на подложку, формируя таким образом наночастицы и наноструктуры только сканированием луча и не используя каких-либо масок. В этом случае мы имеем пример «bottom-up» технологии.

Атомная нанолитография с помощью оптических полей. При литографии синтез наноструктур и наночастиц фактически обусловлен управлением движением отдельных атомов различными материальными шаблонами — масками. Однако в последнее время, благодаря развитию нанооптики, оказывается возможным управлять движением атомов с помощью оптических полей [6].

В зависимости от соотношения частоты лазерного поля и резонансной частоты электронных колебаний в нейтральном атоме атом будет выталкиваться из области более слабого оптического поля в область более сильного или наоборот. Впервые возможность фокусировки атомных пучков в нанополоски была продемонстрирована с помощью стоячей лазерной волны [28] (рис. 4). С помощью стоячей волны, образующейся при суперпозиции нескольких лазерных пучков, можно получить и более сложные структуры.

Метод атомной «камеры-обскуры». В работах Балыкина [28] был предложен оригинальный метод атомной нанолитографии, в котором используется хорошо известный принцип камеры-обскуры. Реализованная ими атомная «камера-обскура» (atomic pinhole camera) позволила создать на поверхности твердого тела массив идентичных наноструктур с характерными размерами отдельной наноструктуры менее 50 нм.

Принципиальная схема эксперимента с атомной «камерой-обскурой» показана на рис. 5. Пучок атомов Sr пропускается через набор отверстий в металлической маске, формируя таким образом, по аналогии с оптикой, «светящийся объект» заданной геометрии. Атомы,

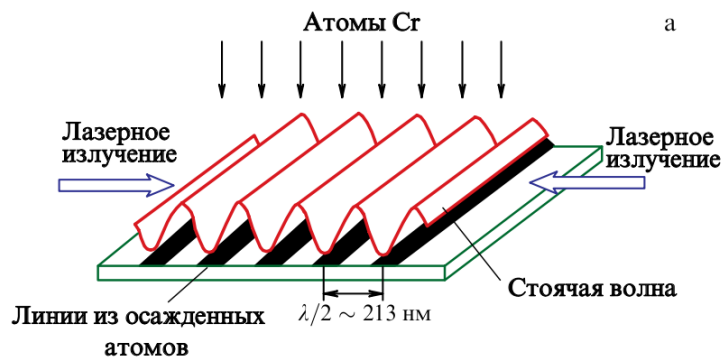


Рис. 4: Схема фокусировки атомов стоячей световой волной [6, 28].

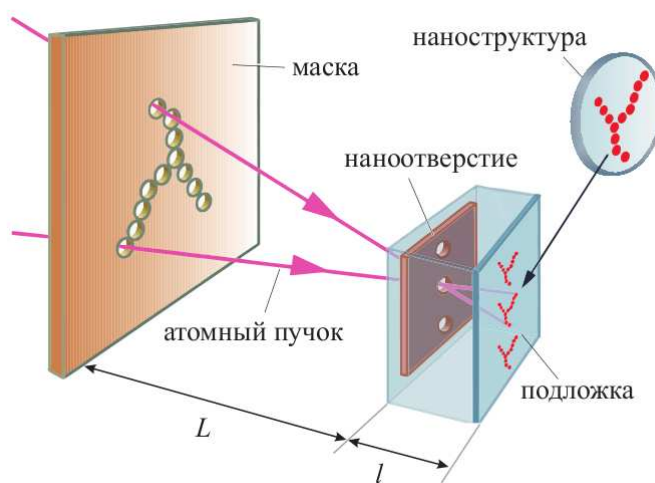


Рис. 5: Схема атомной камеры-обскуры [28].

прошедшие через отверстия в маске, распространяясь в вакууме по прямолинейным траекториям, подобно световым лучам, попадают на тонкую пленку (толщиной $h = 5$ мкм), размещенную на расстоянии $L = 90$ мм от маски с большим количеством ($N \sim 3 \cdot 10^7$ см $^{-2}$) отверстий конической формы (с входным диаметром $d = 50$ нм и выходным $D \sim 350$ нм). Каждое отверстие пленки является для атомов «камерой-обскурой», формирующей свое индивидуальное изображение «объекта» на поверхности подложки, размещенной на расстоянии $l = 5$ мкм за пленкой. В такой геометрии на подложке создается набор уменьшенных примерно в $n = L/l = 8000$ раз изображений «объекта», образованных напыленными на поверхность атомами Сг. Замечательной особенностью этого подхода является возможность формировать миллионы сложных по форме наночастиц и наноструктур одновременно.

Существуют и другие методы атомной оптики, такие как использование различных атомных линз, атомная наноперьевая литография и др. [28].

Формирование произвольных трехмерных металлических наноструктур с помощью сфокусированных ионных пучков. Замечательной особенностью сфокусированных ионных пучков является их способность модифицировать вещество (разрушать химические и кристаллические связи) с высоким пространственным разрешением (до 5 нм) и на большую глубину (до 10 мкм) [6]. Модификация связей в веществе может быть такой сильной, что многие вещества сами по себе становятся положительными резистами. Таким образом, направляя сфокусированный ионный пучок последовательно в нужные области и убирая затем модифицированные участки тем или иным методом, можно создавать небольшое число наночастиц и наноструктур любой сложности. Трехмерная обработка металлов с помощью сфокусированных ионных пучков является типичным примером «top-down» нанотехнологии.

Также существуют различные методы нанохимии [6], которые не рассматриваются в данной работе.

3 Расчет материальных параметров

Стандартными металлами, используемыми в теоретических и экспериментальных работах по наноплазмонике, являются золото и серебро, из-за относительно небольших потерь в оптическом диапазоне частот. Для расчета диэлектрической проницаемости металла наноплазмонной антенны ε использовались экспериментальные данные из работы [29], в которой представлена зависимость комплексного коэффициента преломления $\tilde{n}(E) = n + i\kappa$ для золота и серебра как функция энергии фотонов. Для использования в данной работе комплексный показатель преломления был пересчитан в комплексную диэлектрическую проницаемость $\varepsilon = \varepsilon' + i\varepsilon''$, которые связаны как [6]:

$$\begin{aligned}\varepsilon' &= n^2 - \kappa^2, \\ \varepsilon'' &= 2n\kappa\end{aligned}\tag{1}$$

На рис. 6 представлены графики на основе этих данных. Из рис. 6 видно, что, в то время как действительные части диэлектрической проницаемости золота и серебра отличаются незначительно, мнимая часть ε серебра значительно меньше практически во всем оптическом диапазоне. Поэтому дальнейшие расчеты проводились для серебрянной наноплазмонной антенны.

При расчете $\varepsilon(\lambda)$ для длины волны, значение которой не совпадало точно с табличным, значение диэлектрической проницаемости аппроксимировалось линейной зависимо-

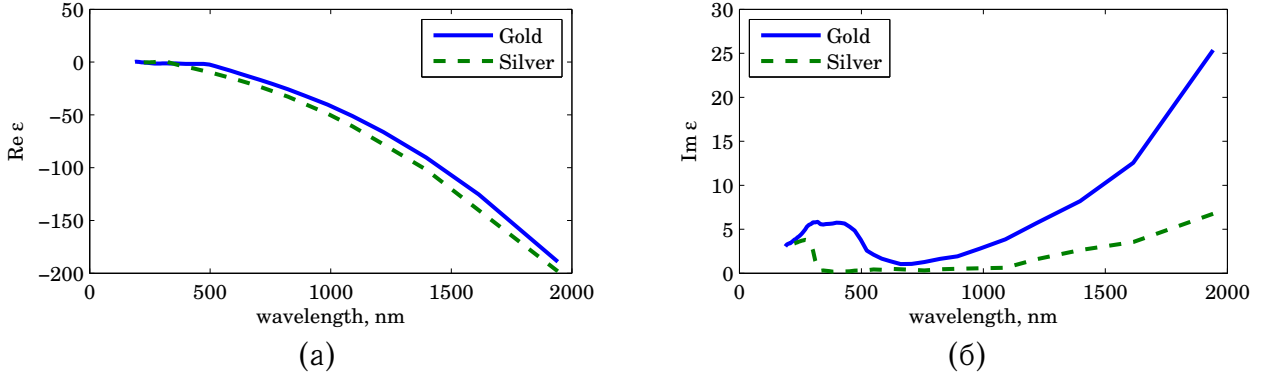


Рис. 6: Диэлектрическая проницаемость золота и серебра [29]: (а) действительная часть ϵ , (б) мнимая часть ϵ

стью между двумя ближайшими значениями энергии фотонов, соответствующими данной длине волны.

4 Расчет поля

На данный момент существует несколько форм оптических наноплазмонных антенн, для которых получены аналитические решения уравнений Максвелла. Это сфера, сфероид и эллипсоид [6], частицы конической формы, а также кластеры из сфер и сфероидов [18, 19, 20, 21, 22, 23, 24, 25]. При этом решения для кластеров наносфероидов достаточно сложны [24], а аналитических решений для частиц более сложной формы не существует. На практике для расчета полей вблизи частиц сложной формы используют численные методы.

В настоящей работе аналитически рассчитывается простейший случай — сферическая наноплазмонная антенна. На следующем этапе работы планируется исследовать флуоресценцию атомов вблизи кластеров сфер и сфероидов, а также антенн-бабочек (bowtie-antenna [4, 30, 12]).

Во многих работах для расчета электромагнитного поля используется формализм диадной функции Грина [2, 14, 16, 31, 32]. Этот метод использован для расчета поля и усиления флуоресценции в приложении А.

Рассчитаем напряженность электрического поля \mathbf{E} вблизи наноплазмонной антенны. Так как мы рассматриваем сферическую наночастицу, размеры которой (радиус порядка 20 нм) значительно меньше, чем длина волны падающего излучения, то можно использовать квазистатическое приближение. Согласно [6], в однородном электрическом поле в случае сферической частицы возбуждаются только дипольные резонансы. Рассеянное частицей поле является полем диполя с дипольным моментом

$$\mathbf{d} = \alpha \mathbf{E}_0, \quad (2)$$

где \mathbf{E}_0 — электрическая напряженность падающего на частицу поля, \mathbf{d} — наведенный дипольный момент частицы.

Поляризуемость сферы равна [6]

$$\alpha = \frac{\epsilon(\omega) - \epsilon_2}{\epsilon(\omega) + 2\epsilon_2} a^3 = \frac{\epsilon(\omega) - 1}{\epsilon(\omega) + 2} a^3, \quad (3)$$

где ϵ — диэлектрическая проницаемость сферы, ϵ_2 — диэлектрическая проницаемость среды, a — радиус сферы.

Поле диполя в ближней зоне рассчитывается согласно [33]:

$$\mathbf{E}_{\text{scat}} = \frac{3\mathbf{n}(\mathbf{n} \cdot \mathbf{d}) - \mathbf{d}}{r^3}, \quad (4)$$

где $\mathbf{n} = \mathbf{r}/r$. Поле вблизи наномантенны есть сумма рассеянного и падающего полей:

$$\mathbf{E} = \mathbf{E}_{\text{scat}} + \mathbf{E}_0. \quad (5)$$

На рис. 7 и 8 приведены примеры пространственного распределения квадрата электрической напряженности, а также радиальной и тангенциальной компоненты электрической напряженности, для $\varepsilon = -15,3405 + 0,4077i$ [29] и длины волны $\lambda = 590$ нм.

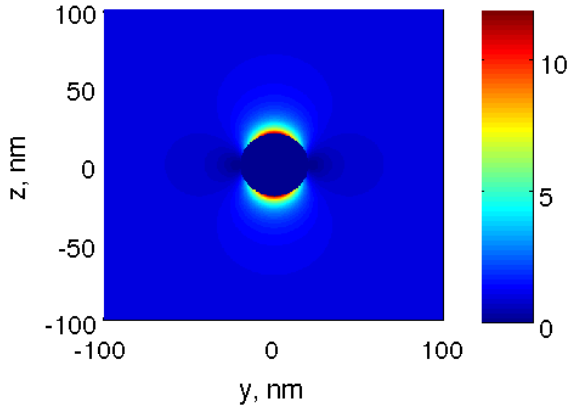


Рис. 7: Квадрат электрической напряженности вблизи серебряной сферической наномантенны $|\mathbf{E}|^2/|\mathbf{E}_0|^2$ в плоскости $x = 0$ при $a = 20$ нм и $\lambda = 590$ нм.

5 Скорость излучательной релаксации

Пионерской работой, в которой была отмечена зависимость излучательных свойств системы от окружения общепринято считается работа Парсела [27]. С тех пор для управления излучением атомов активно использовались различные типы резонаторов, а в последнее время и наноплазмонные устройства, такие как наномантенны. На практике использование наночастиц для управления скоростью излучательной релаксации удобнее применения резонаторов, так как малые по размерам наночастицы и сделанные на их основе зонды проще подвести к исследуемым объектам. Использование наномантенн может приводить как к усилению скорости спонтанной релаксации на несколько порядков, так и уменьшению ее практически до нуля [6].

Строгий вывод зависимости скорости излучательной релаксации γ от окружения дается в рамках квантовой теории. Можно показать, что γ определяется плотностью электромагнитных состояний и может быть рассчитано при помощи функции Грина системы [34]. Тем не менее, изменение скорости излучательной релаксации можно рассчитать, считая атом классическим диполем [34, 2], считая, что

$$\frac{\gamma}{\gamma_0} = \frac{P}{P_0} \quad (6)$$

где γ_0 — скорость излучательной релаксации атома в свободном пространстве, γ — скорость излучательной релаксации атома вблизи наномантенны, а P и P_0 — мощности излучения классического диполя в свободном пространстве и в неоднородном окружении. Мощность излучения диполя в неоднородном окружении отлична от мощности излучения

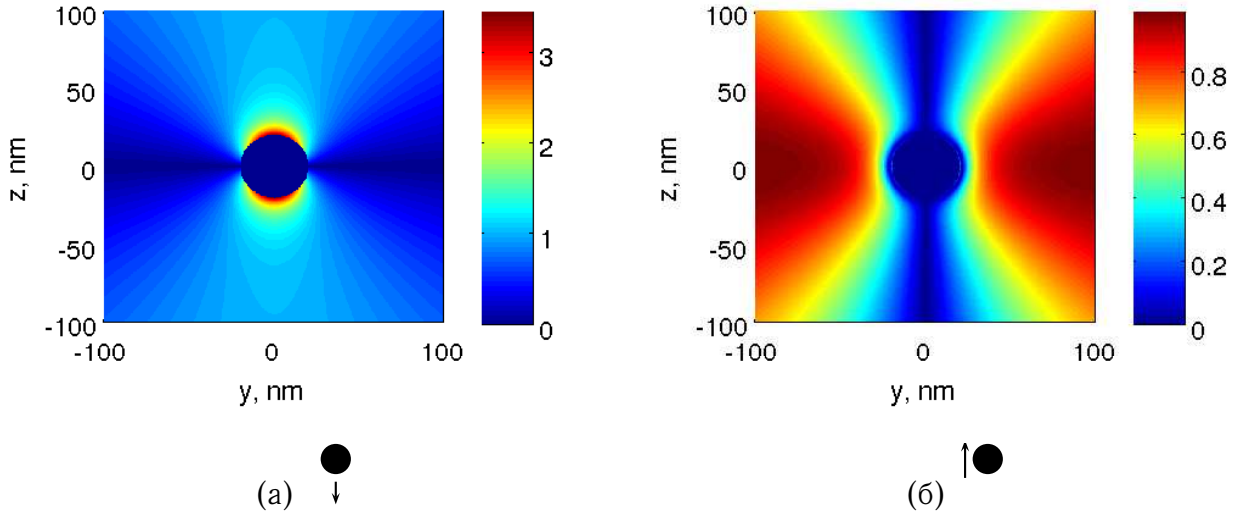


Рис. 8: Электрическая напряженность вблизи серебряной наносферы в плоскости $x = 0$, радиальная (а) и тангенциальная (б) компоненты при $a = 20$ нм, $\lambda = 590$ нм.

в свободном пространстве вследствие того, что суммарный дипольный момент системы «атом + нанопантенна» отличается от дипольного момента атома.

Согласно [6] рассчитаем скорость излучательной релаксации атома вблизи сферической наночастицы:

$$\frac{\gamma}{\gamma_0} = \left| 1 + \frac{2(\varepsilon - \varepsilon_2)}{\varepsilon + 2\varepsilon_2} \left(\frac{a}{r} \right)^3 \right|^2 \quad (7)$$

для радиальной ориентации диполя относительно сферы и

$$\frac{\gamma}{\gamma_0} = \left| 1 - \frac{(\varepsilon - \varepsilon_2)}{\varepsilon + 2\varepsilon_2} \left(\frac{a}{r} \right)^3 \right|^2 \quad (8)$$

для тангенциальной ориентации. ε и ε_2 — диэлектрические проницаемости частицы и окружающей среды, a — радиус сферы, r — радиальная координата атома, γ_0 — скорость излучательной релаксации атома в свободном пространстве, γ — скорость излучательной релаксации атома вблизи нанопантенны. На рис. 9 и 10 приведено пространственное распределение γ .

Обращение в нуль скорости излучательной релаксации атома с тангенциальной ориентацией дипольного момента при приближении к поверхности нанопантенны связано с тем, что в нанопантенне наводится дипольный момент, равный по модулю, но противоположный по направлению дипольному моменту атома. В результате суммарный момент системы становится равным нулю, и она практически перестает излучать.

Для получения хорошо разрешенных спектров, содержащих информации о внутренней структуре атома (например, спектров Апанасевича-Моллоу в случае двухуровневой модели атома), необходимо значительное усиление поля для появления боковых компонент и малые значения γ (при больших γ отдельные линии будут неразличимы). Поэтому определим коэффициент полезности R как

$$R = \frac{E/E_0}{\gamma/\gamma_0}. \quad (9)$$

где в качестве E и γ в случае тангенциального и радиального расположения диполя нужно брать соответствующие значения. Нашей задачей является определение таких положений атома вблизи нанопантенны, при которых коэффициент полезности максимален. На рис.

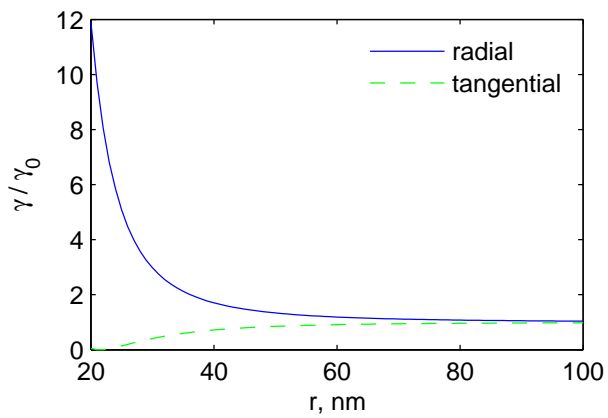


Рис. 9: Скорость излучательной релаксации атома вблизи серебряной сферической наночастицы от радиальной координаты при радиальной и тангенциальной ориентациях диполя для $a = 20$ нм, $\lambda = 590$ нм.

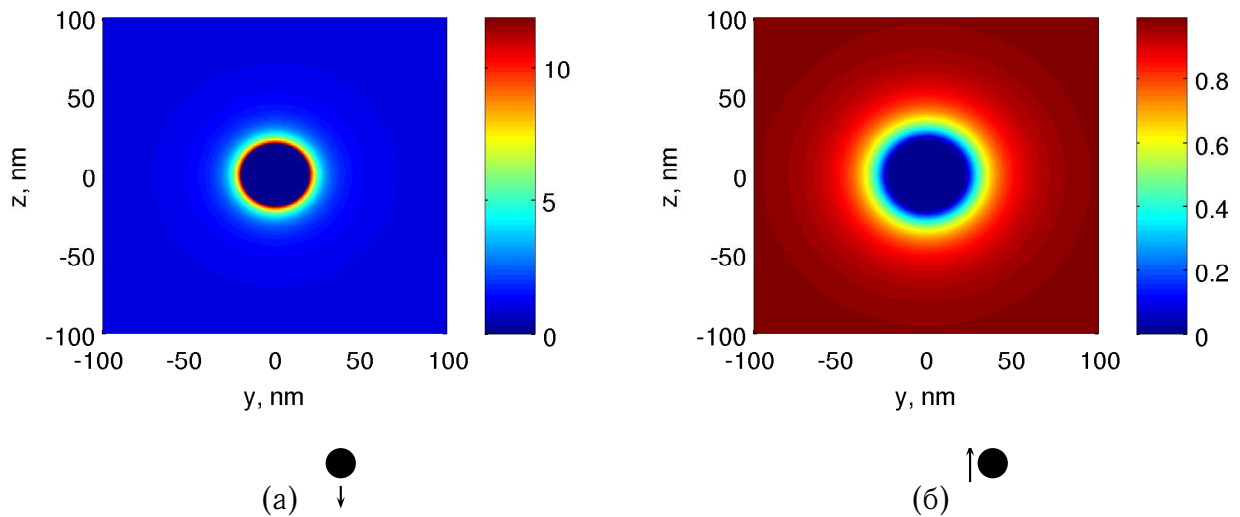


Рис. 10: Скорость излучательной релаксации вблизи серебряной наносферы в плоскости $x = 0$ при радиальной (а) и тангенциальной (б) ориентациях диполя при $a = 20$ нм, $\lambda = 590$ нм.

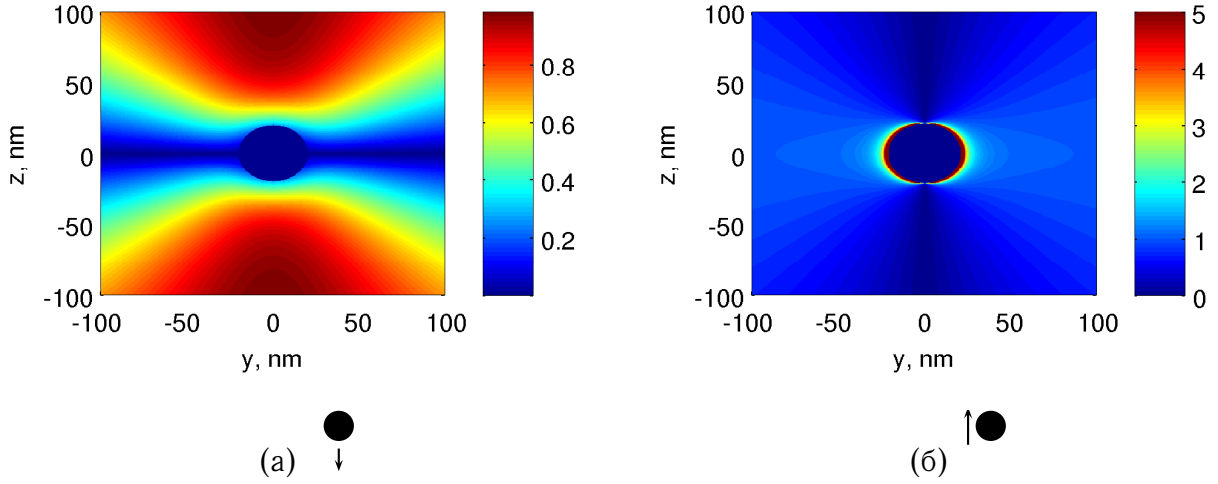


Рис. 11: Коэффициент полезности R вблизи наносферы в плоскости $x = 0$ при радиальной (а) и тангенциальной (б) ориентациях диполя при $a = 20$ нм, $\lambda = 590$ нм. В случае тангенциальной ориентации (б) все значения больше 5 показаны одним цветом, при приближении к поверхности наносферы $R \rightarrow \infty$.

11 приведено пространственное распределение R вблизи наносферы. Отметим, что для радиальной ориентации диполя относительно сферы значения R не превышают 1, γ растет быстрее, чем поле \mathbf{E} при приближении к поверхности сферы, поэтому коэффициент полезности R вблизи наноантенны стремится к нулю. Поэтому при радиальной ориентации диполя компоненты спектра уширяются, что будет проиллюстрировано в разделе 6. В случае же тангенциальной ориентации диполя, коэффициент полезности R может принимать значения, большие единицы, в этих областях спектр флуоресценции должен становиться более четким, чем в свободном пространстве.

6 Спектр флуоресценции

Рассчитаем спектр флуоресценции атома вблизи наносферы. Будем использовать для этого сначала двухуровневое, а потом трехуровневое приближение для атома. Скорость релаксации состоит из излучательной части и безызлучательной:

$$\gamma = \gamma_{\text{radiative}} + \gamma_{\text{nonradiative}} \quad (10)$$

При расчете формы спектра в нашем приближении мы не учитывали безызлучательную часть скорости релаксации. В приложении А рассчитано усиление интенсивности флуоресценции атома вблизи наносферы с учетом безызлучательной части скорости релаксации, но без рассмотрения формы спектра. Как показывают эти расчеты, за счет омических потерь в наночастице, при приближении атома к поверхности металла $\gamma_{\text{nonradiative}}$ значительно увеличивается, что приводит к гашению флуоресценции атома. Это происходит при расстояниях между поверхностью наночастицы и атомом менее $\approx 5 - 10$ нм. Если атом расположен дальше, то влиянием омических потерь можно пренебречь. Далее спектр флуоресценции рассчитывается без учета омических потерь в наночастице.

6.1 Двухуровневое приближение

Рассмотрим флуоресценцию двухуровневой квантовой системы (рис. 12) в пределе сильного поля, когда $\Omega_R \gg \gamma/4$, где $\Omega_R = \frac{d\mathcal{E}}{\hbar}$ — частота Раби управляющего поля, d —

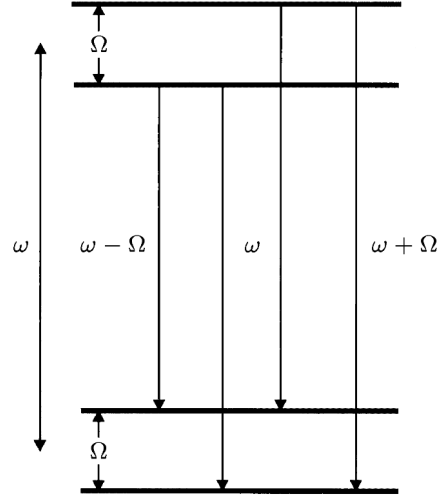


Рис. 12: Схема двухуровневого атома.

матричный элемент оператора дипольного момента, γ — скорость релаксации атома. В этом приближении спектр флуоресценции имеет вид [35, 36]:

$$S(\mathbf{r}, \omega_0) = \frac{I_0(\mathbf{r})}{8\pi} \left[\frac{3\gamma/4}{(\omega - \Omega_R - \omega_0)^2 + (3\gamma/4)^2} + \frac{\gamma}{(\omega - \omega_0)^2 + (\gamma/2)^2} + \frac{3\gamma/4}{(\omega + \Omega_R - \omega_0)^2 + (3\gamma/4)^2} \right] \quad (11)$$

В сильном поле проявляется динамический эффект Штарка, в результате чего энергетические уровни атома расщепляются (рис. 12), а спектр резонансной флуоресценции атома имеет не один пик, как в случае слабого поля, а три, боковые пики отстоят от центрального на Ω_R .

При приближении атома к наноантенне изменяется поле, в которое помещен атом, что ведет к изменению частоты Раби и скорости релаксации. Изменяя, при помощи наноантенны, интенсивность падающего излучения, мы можем управлять положением боковых пиков относительно центрального, а изменяя γ — можем управлять шириной пиков.

Скорость излучательной релаксации и частота Раби вблизи наноантенны рассчитывались согласно разделам 4 и 5. При расчетах коэффициент $\frac{I_0(\mathbf{r})}{8\pi}$ был опущен, спектр нормирован так, чтобы в отсутствие наноантенны максимум спектральной плотности был равен единице.

На рис. 13 и 14 приведен вид спектра флуоресценции атома для трех различных положений атома относительно сферы (координаты атома $(0, 0, 25)$, $(0, 0, 30)$ и $(0, 0, 100)$ нм.) в случае радиального и тангенциального расположения диполя относительно сферы. Параметры атома взяты из [5]. Дипольный момент перехода рассчитан по формуле [34, 35]

$$d = \left(\frac{3\gamma_0 \pi \epsilon_0 \hbar c^3}{\omega_0^3} \right)^{\frac{1}{2}}; \quad (12)$$

Как отмечалось ранее, когда диполь ориентирован радиально, то при приближении атома к поверхности наноантенны спектр флуоресценции уширяется. Если поместить атом в свободном пространстве в достаточно сильное поле для появления трех пиков в спектре, а потом начать приближать к атому наносферу, то отдельные линии уширяются и становятся менее различимы, а также увеличивается полная ширина спектра. В случае тангенциальной ориентации диполя, при приближении атома к сфере, отдельные компоненты спектра сужаются, однако общая ширина спектра сужается тоже.

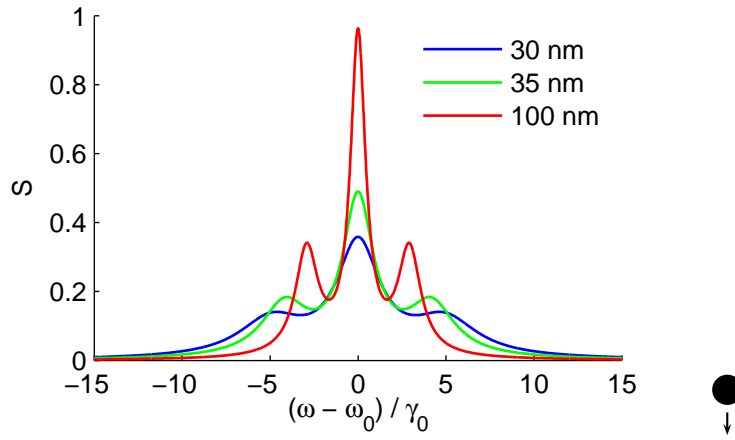


Рис. 13: Спектр флуоресценции двухуровневого атома вблизи наносферы для различных положений атома $\mathbf{r} = (0, 0, 30)$ нм, $\mathbf{r} = (0, 0, 35)$ нм, $\mathbf{r} = (0, 0, 100)$ нм, $a = 20$ нм, $\lambda = 590$ нм, $\gamma_0 = 20$ МГц, радиальная ориентация диполя, падающее поле 500 В/м, $\Omega_R/\gamma_0 = 2,9$.

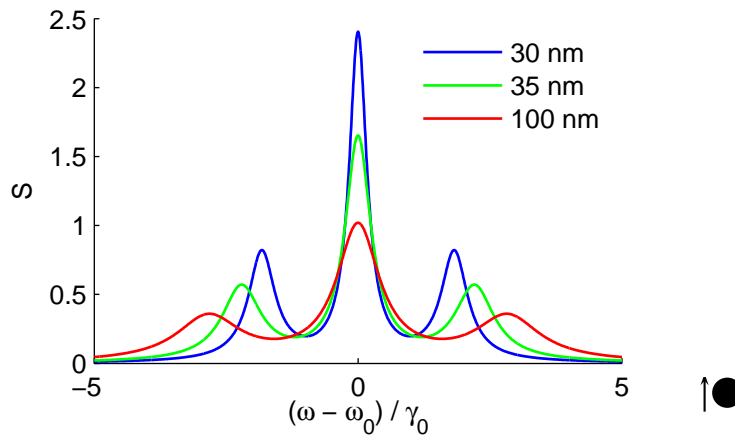


Рис. 14: Спектр флуоресценции двухуровневого атома вблизи наносферы для различных положений атома $\mathbf{r} = (0, 30, 0)$ нм, $\mathbf{r} = (0, 35, 0)$ нм, $\mathbf{r} = (0, 100, 0)$ нм, $a = 20$ нм, $\lambda = 590$ нм, $\gamma_0 = 20$ МГц, тангенциальная ориентация диполя, падающее поле 500 В/м, $\Omega_R/\gamma_0 = 2,9$.

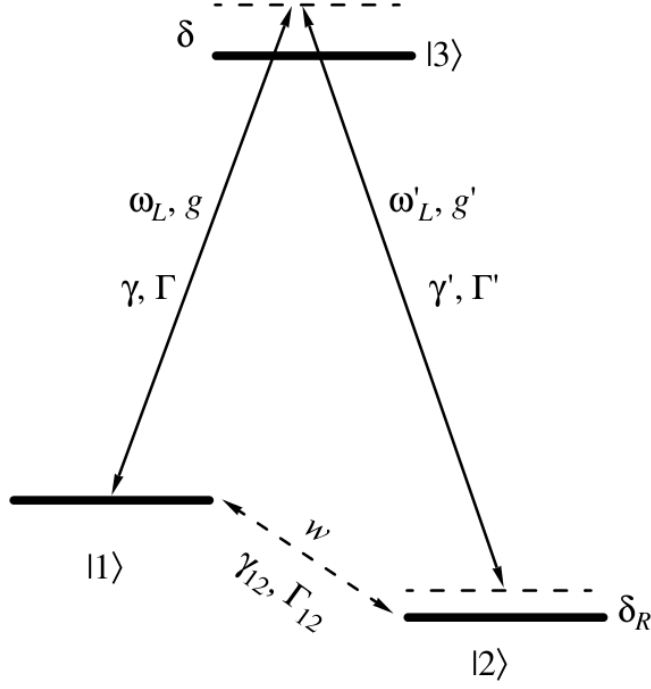


Рис. 15: Схема трехуровневой Λ -системы.

6.2 Трехуровневое приближение

Рассмотрим атом как трехуровневую Λ -систему, схема которой приведена на рис. 15. Считаем, что в дипольном приближении переходы 1–3 и 2–3 разрешены, а переход 1–2 запрещен. Система возбуждается двумя монохроматическими лазерными полями с частотами ω_L и ω'_L и амплитудами \mathbf{A}_{ω_L} и $\mathbf{A}_{\omega'_L}$, γ и Γ — скорости релаксации и дефазировки на переходах 1–3 и 2–3, Γ_{12} — скорость дефазировки на переходе 1–2. Обозначим частоты Раби внешнего поля как $g = \mathbf{d}_{13}\mathbf{A}_{\omega_L}/\hbar$ и $g' = \mathbf{d}_{23}\mathbf{A}_{\omega'_L}/\hbar$, где \mathbf{d}_{13} и \mathbf{d}_{23} — дипольные матричные элементы соответствующих переходов. Рамановской двухфотонной расстройкой называется $\delta_R = \omega'_L - \omega_L - \omega_{12}$, где ω_{12} — частота перехода 1–2.

Согласно [37], при нулевой рамановской расстройке $\delta_R = 0$ и в пределе насыщающего поля $g_\Lambda = \sqrt{g^2 + g'^2} \gg \gamma, \Gamma, \delta$ спектр рассчитывается по формуле:

$$S(\omega) = 2 \operatorname{Re} \left[\sum_{k=0}^8 \frac{C_k^{13}}{i(\omega - \omega_L) + \lambda_k} + \frac{C_k^{23}}{i(\omega - \omega'_L) + \lambda_k} \right] \quad (13)$$

где

$$\begin{aligned} \lambda_0 &= 0, & \lambda_1 &= -\frac{\gamma}{2}, & \lambda_2 &= -\Gamma, \\ \lambda_3 &= ig_\Lambda - \frac{3\gamma}{4} - \frac{\Gamma}{2}, & \lambda_4 &= -ig_\Lambda - \frac{3\gamma}{4} - \frac{\Gamma}{2}, & \lambda_5 &= i\frac{g_\Lambda + \delta}{2} - \frac{\Gamma}{2}, \\ \lambda_6 &= i\frac{g_\Lambda - \delta}{2} - \frac{\Gamma}{2}, & \lambda_7 &= i\frac{-g_\Lambda + \delta}{2} - \frac{\Gamma}{2}, & \lambda_8 &= i\frac{-g_\Lambda - \delta}{2} - \frac{\Gamma}{2}. \end{aligned}$$

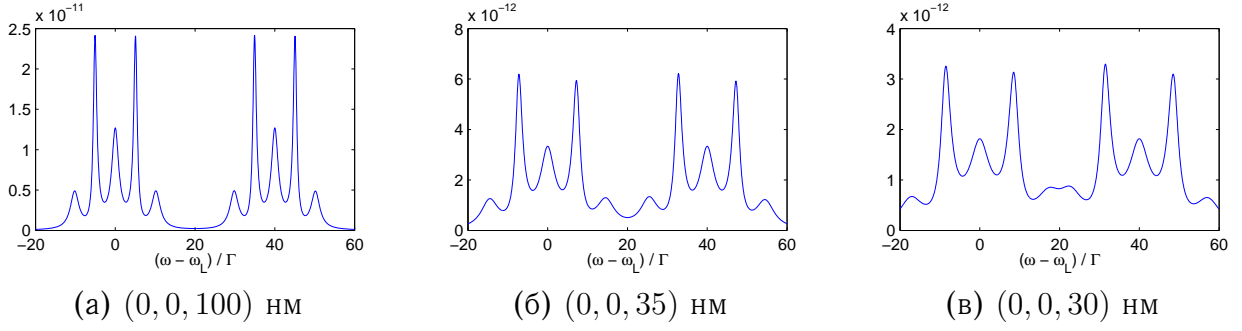


Рис. 16: Спектр флуоресценции трехуровневой системы при разных расстояниях между наносферой и атомом при радиальном положении диполя, координаты атома: (а) (0, 0, 100), (б) (0, 0, 35) и (в) (0, 0, 30) нм. Координаты центра сферы (0, 0, 0) нм. Параметры расчета $g_\Lambda^0 = 10\Gamma$, $\delta = 0$, $\gamma = \Gamma = 20 \cdot 10^6$, $\Gamma_{12} = 0.001\Gamma$, $\varphi = \pi/4$, $\lambda_L = 590$ нм, $\omega'_L = \omega_L + 40\gamma$

$$\begin{aligned}
C_0^{13} &= C_0^{23} = C_0^{13} = C_0^{23}, & C_2^{13} &= \frac{\Gamma_{12}}{\gamma} \cos^4 \varphi \sin^2 \varphi, & C_2^{23} &= \frac{\Gamma_{12}}{\gamma} \cos^2 \varphi \sin^4 \varphi, \\
C_3^{13} &= \frac{\Gamma_{12}}{2\gamma} \cos^4 \varphi \sin^2 \varphi \left(1 + \frac{i(2\Gamma - 11\gamma)}{64g_\Lambda} \right), & C_3^{23} &= \frac{\Gamma_{12}}{2\gamma} \cos^2 \varphi \sin^4 \varphi \left(1 + \frac{i(2\Gamma - 11\gamma)}{64g_\Lambda} \right), \\
C_4^{13} &= (C_3^{13})^*, & C_4^{23} &= (C_3^{23})^*, & C_5^{13} &= C_5^{23} = C_7^{13} = C_7^{23} = 0, \\
C_6^{13} &= \frac{\Gamma_{12}}{\gamma} \cos^4 \varphi \sin^2 \varphi \left(1 - \frac{i(2\Gamma - \gamma) - \delta}{g_\Lambda} \right), & C_6^{23} &= \frac{\Gamma_{12}}{\gamma} \cos^2 \varphi \sin^4 \varphi \left(1 - \frac{i(2\Gamma - \gamma) - \delta}{g_\Lambda} \right), \\
C_8^{13} &= \frac{\Gamma_{12}}{\gamma} \cos^4 \varphi \sin^2 \varphi \left(1 + \frac{i(2\Gamma - \gamma) - \delta}{g_\Lambda} \right), & C_8^{23} &= \frac{\Gamma_{12}}{\gamma} \cos^2 \varphi \sin^4 \varphi \left(1 + \frac{i(2\Gamma - \gamma) - \delta}{g_\Lambda} \right).
\end{aligned}$$

На рис. 16 и 18 приведены спектры флуоресценции трехуровневой системы для разных значений расстояний между наносферой и атомом при нулевой однофотонной расстройке $\delta = 0$, а на рис.17 при $\delta = 3\Gamma$. В отличие от приближения двухуровневого атома, где спектр флуоресценции имеет три пика, в трехуровневом приближении при нулевой рамановской расстройке спектр флуоресценции имеет пять пиков на каждом из двух разрешенных переходов. В случае ненулевой рамановской расстройки количество пиков на каждом переходе увеличивается до 7 (рис. 16). Кроме того, в условиях неточного резонанса, когда однофотонная расстройка δ не равна нулю, спектр флуоресценции трехуровневой системы перестает быть симметричным (рис.17).

При приближении атома к сферической наноантенне при радиальном положении диполя спектр флуоресценции уширяется и отдельные спектральные линии становятся менее различимы (рис. 16). При тангенциальном положении диполя, наоборот, линии сужаются, а также уменьшается общая ширина спектра из-за уменьшения частоты Раби. Частота Раби уменьшается, потому что сферическая наноантенна не усиливает, а ослабляет тангенциальную компоненту электрической напряженности (рис. 18).

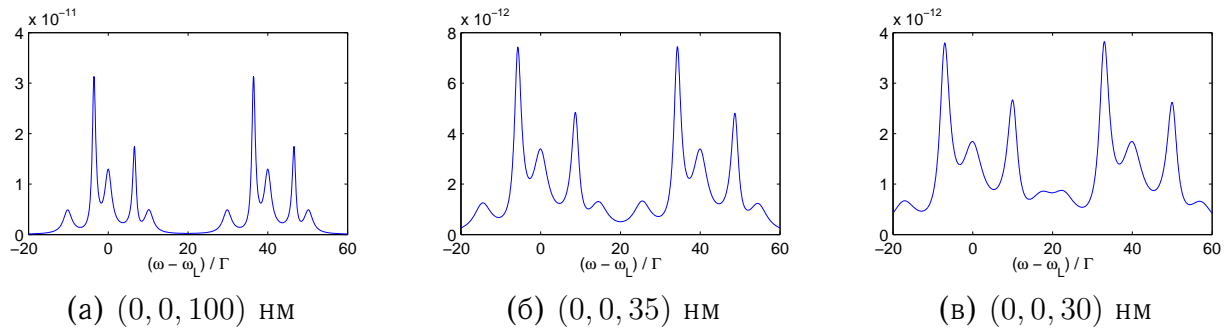


Рис. 17: Спектр флуоресценции трехуровневой системы при разных расстояниях между наносферой и атомом при радиальном положении диполя, координаты атома: (а) $(0, 0, 100)$, (б) $(0, 0, 35)$ и (в) $(0, 0, 30)$ нм. Координаты центра сферы $(0, 0, 0)$ нм. Параметры расчета $g_{\Lambda}^0 = 10\Gamma$, $\delta = 3\Gamma$, $\gamma = \Gamma = 20 \cdot 10^6$, $\Gamma_{12} = 0.001\Gamma$, $\varphi = \pi/4$, $\lambda_L = 590$ нм, $\omega'_L = \omega_L + 40\gamma$

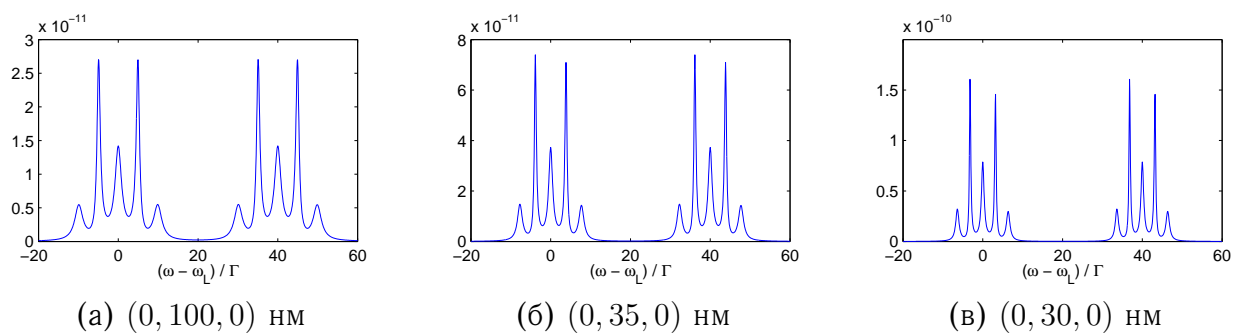


Рис. 18: Спектр флуоресценции трехуровневой системы при разных расстояниях между наносферой и атомом при тангенциальном положении диполя, координаты атома: (а) $(0, 100, 0)$, (б) $(0, 35, 0)$ и (в) $(0, 30, 0)$ нм. Координаты центра сферы $(0, 0, 0)$ нм. Параметры расчета $g_{\Lambda}^0 = 10\Gamma$, $\delta = 0$, $\gamma = \Gamma = 20 \cdot 10^6$, $\Gamma_{12} = 0.001\Gamma$, $\varphi = \pi/4$, $\lambda_L = 590$ нм, $\omega'_L = \omega_L + 40\gamma$

7 Заключение

Результаты, содержащиеся в курсовой работе:

- Рассчитано распределение электромагнитного поля сферической наноантенны при взаимодействии антенны с лазерным монохроматическим полем.
- Рассчитано распределение скорости излучательной релаксации атома вблизи сферической наноантенны при различных положениях диполя, а также распределение коэффициента полезности, определяемого как отношение изменения скорости излучательной релаксации к изменению напряженности поля в данной точке.
- Рассчитаны спектры резонансной флуоресценции одиночного атома вблизи сферической наноантенны в двухуровневом и трехуровневом приближениях при различных положениях атома относительно сферы, и показано, что при помощи сферической наноантенны можно изменять спектр флуоресценции атома, сужая ширину спектральных линий и уменьшая расстояние между ними при тангенциальной ориентации диполя, и уширяя отдельные спектральные линии и увеличивая расстояние между ними в случае радиальной ориентации диполя.
- Показан эффект гашения флуоресценции при приближении к поверхности наноантенны вследствие омических потерь в металле.

В дальнейшем планируется исследовать спектр флуоресценции атома вблизи кластеров наночастиц. Например, при использовании двух сферических наноантенн разного размера, можно отдельно управлять скоростью релаксации на двух переходах трехуровневой системы, а также отдельно управлять усилением поля на двух частотах, соответствующим этим переходам. То есть можно создать инструмент, позволяющий гибко управлять спектром резонансной флуоресценции трехуровневой квантовой системы. Еще более широкие возможности открываются, если вместо кластера сфер использовать кластер наносфероидов и наноэллипсоидов, так как в этом случае у каждой частицы имеется несколько плазмонных резонансов, и, управляя геометрическими параметрами частиц, можно настраивать частоты этих резонансов на нужные переходы в атоме. Если также учесть то, что при взаимодействии атома с плазмонными структурами сдвигается частота атомного перехода, то можно использовать наноантенны для управления однофотонной расстройкой δ .

Таким образом, метод управления спектром флуоресценции атома при помощи наноантенн имеет широкие перспективы и требует дальнейшего исследования.

А Расчет усиления флуоресценции при помощи диадной функции Грина

В настоящем приложении показан пример расчета усиления флуоресценции одиночной молекулы (атома) вблизи сферической наноантенны с использованием диадной функции Грина [16]. Нас интересует зависимость усиления и гашения флуоресценции молекулы от расстояния до сферы.

Все расчеты будем проводить в системе СИ. Рассмотрим молекулу, расположенную в точке \mathbf{r}_0 , как двухуровневую систему с дипольным моментом перехода \mathbf{p} и частотой перехода ω . Центр сферической частицы радиусом a находится в точке \mathbf{r}_p . На систему падает лазерное излучение, поляризованное вдоль оси z . Мощность сигнала флуоресценции пропорциональна γ_{em} — коэффициенту флуоресценции молекулы (fluorescence rate).

Флуоресценция состоит из двух процессов — поглощения фотона на частоте ω_1 и дальнейшего испускания фотона на частоте ω_2 . Будем считать, что $\omega_1 = \omega_2 = \omega$, в соответствии с [14] одночастотное приближение в данном случае применимо. Процессы поглощения и излучения будем считать независимыми. Для слабого возбуждения (при отсутствии насыщения) $\gamma_{em} = \gamma_{exc} \cdot q$, где γ_{exc} — коэффициент возбуждения (excitation rate), а q — квантовый выход. Если γ_r — излучательная часть коэффициента спонтанной релаксации, а γ — полная скорость спонтанной релаксации молекулы, то квантовый выход равен

$$q = \gamma_r / \gamma. \quad (14)$$

Усиление флуоресценции вблизи нанопантенны равно

$$\frac{\gamma_{em}}{\gamma_{em}^0} = \frac{\gamma_{exc}}{\gamma_{exc}^0} \frac{q}{q^0}, \quad (15)$$

переменные с верхним индексом 0 соответствуют молекуле в свободном пространстве, без индекса 0 — молекуле вблизи нанопантенны. Излучающую молекулу можно рассматривать как классический диполь [16, 31, 38]. Обозначим полную скорость распада возбужденной молекулы как

$$\gamma^0 = \gamma_r^0 + \gamma_{nr}^0, \quad (16)$$

где γ_r^0 — излучательная скорость распада, γ_{nr}^0 — безизлучательная скорость распада в свободном пространстве. γ_{nr}^0 отвечает за собственные безизлучательные потери внутри молекулы и поэтому не зависит от расстояния между молекулой и антенной. Тогда собственный квантовый выход молекулы в свободном пространстве равен

$$q^0 = \frac{\gamma_r^0}{\gamma_r^0 + \gamma_{nr}^0} \quad (17)$$

Наличие антенны вносит в систему дополнительные потери (например, омические потери в антенне), поставим им в соответствие γ_{abs} . Скорость распада и квантовый выход в присутствии антенны принимают вид

$$\gamma = \gamma_r + \gamma_{nr} + \gamma_{abs}, \quad (18)$$

$$q = \frac{\gamma_r}{\gamma_r + \gamma_{nr} + \gamma_{abs}}. \quad (19)$$

Положив $\gamma_{nr} = \gamma_{nr}^0$ и учитывая выражение для q_0 (17), получим конечное выражение для q :

$$q = \frac{\gamma_r / \gamma_r^0}{\gamma_r / \gamma_r^0 + \gamma_{abs} / \gamma_r^0 + (1 - q^0) / q^0} \quad (20)$$

Теперь для расчета усиления флуоресценции по формулам (15) и (20) нужно вычислить $\gamma_{exc} / \gamma_{exc}^0$, γ_r / γ_r^0 и $\gamma_{abs} / \gamma_r^0$.

Скорость переноса энергии от молекулы к частице γ_{abs} можно рассчитать, зная мощность P_{abs} , излучаемую молекулой и поглощаемую в частице [2], как

$$\frac{\gamma_{abs}}{\gamma_r^0} = \frac{P_{abs}}{P_0}, \quad (21)$$

где $P_0 = \frac{\omega^4 |\mathbf{p}|^2}{12\pi\epsilon_0 c^3}$ — мощность, излучаемая классическим диполем, колеблющимся с частотой ω и дипольным моментом \mathbf{p} . Согласно [31, 33],

$$P_{\text{abs}} = \frac{1}{2} \int_V \text{Re}(\mathbf{j} \cdot \mathbf{E}^*) d\mathbf{r}^3, \quad (22)$$

где интегрирование ведется по объему наноантенны, \mathbf{j} — плотность токов, созданная полем молекулы в частице, \mathbf{E} — напряженность электрического поля. Плотность тока можно выразить как $\mathbf{j} = \omega \varepsilon_0 \varepsilon'' \mathbf{E}$, где ε'' — мнимая часть диэлектрической проницаемости вещества ε наноантенны. В итоге

$$P_{\text{abs}} = \frac{1}{2} \int_V \omega \varepsilon_0 \text{Im}(\varepsilon) \mathbf{E}^* \cdot \mathbf{E} d\mathbf{r}^3 \quad (23)$$

\mathbf{E} выразим через диадную функцию Грина системы [31]: $\mathbf{E}(\mathbf{r}) = (k^2/\varepsilon_0) \overset{\leftrightarrow}{\mathbf{G}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0) \mathbf{p}$, где $k = \omega/c$. Теперь найдем диадную функцию Грина нашей системы. Считаем известной функцию Грина однородного пространства [31], которая определяет электрическую напряженность в точке \mathbf{r} , создаваемую осциллирующим диполем, находящимся в точке \mathbf{r}_0 :

$$\overset{\leftrightarrow}{\mathbf{G}}^0(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0) = \left[\overset{\leftrightarrow}{\mathbf{I}} + \frac{1}{k^2} \nabla \otimes \nabla \right] G^0(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0), \quad G^0(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0) = \frac{\exp(ik|\mathbf{r} - \mathbf{r}_0|)}{4\pi|\mathbf{r} - \mathbf{r}_0|}. \quad (24)$$

В рассматриваемой системе поле в точке \mathbf{r} есть сумма полей молекулы \mathbf{E}_m и поля частицы \mathbf{E}_p . Для сферической частицы квазистатическая поляризуемость равна [31]

$$\overset{\leftrightarrow}{\alpha}(\omega) = 4\pi\varepsilon_0 a^3 \frac{\varepsilon(\omega) - 1}{\varepsilon(\omega) + 2} \overset{\leftrightarrow}{\mathbf{I}}, \quad (25)$$

где a — радиус сферы, $\overset{\leftrightarrow}{\mathbf{I}}$ — единичная диада. В дипольном приближении

$$\begin{aligned} \mathbf{E}(\mathbf{r}) = \mathbf{E}_m + \mathbf{E}_p &= \frac{k^2}{\varepsilon_0} \overset{\leftrightarrow}{\mathbf{G}}^0(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0) \mathbf{p} + \frac{k^2}{\varepsilon_0} \overset{\leftrightarrow}{\mathbf{G}}^0(\mathbf{r}, \mathbf{r}_p) \left[\overset{\leftrightarrow}{\alpha} \mathbf{E}_m(\mathbf{r}_p) \right] = \\ &= \frac{k^2}{\varepsilon_0} \overset{\leftrightarrow}{\mathbf{G}}^0(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0) \mathbf{p} + \frac{k^2}{\varepsilon_0} \overset{\leftrightarrow}{\mathbf{G}}^0(\mathbf{r}, \mathbf{r}_p) \left[\overset{\leftrightarrow}{\alpha} \frac{k^2}{\varepsilon_0} \overset{\leftrightarrow}{\mathbf{G}}^0(\mathbf{r}_p, \mathbf{r}_0) \mathbf{p} \right] = \\ &= \frac{k^2}{\varepsilon_0} \left[\overset{\leftrightarrow}{\mathbf{G}}^0(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0) + \frac{k^2}{\varepsilon_0} \overset{\leftrightarrow}{\mathbf{G}}^0(\mathbf{r}, \mathbf{r}_p) \overset{\leftrightarrow}{\alpha} \overset{\leftrightarrow}{\mathbf{G}}^0(\mathbf{r}_p, \mathbf{r}_0) \right] \mathbf{p} \quad (26) \end{aligned}$$

По определению функции Грина $\mathbf{E}(\mathbf{r}) = (k^2/\varepsilon_0) \overset{\leftrightarrow}{\mathbf{G}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0) \mathbf{p}$. Значит, функция Грина равна

$$\overset{\leftrightarrow}{\mathbf{G}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0) = \overset{\leftrightarrow}{\mathbf{G}}^0(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0) + \frac{k^2}{\varepsilon_0} \overset{\leftrightarrow}{\mathbf{G}}^0(\mathbf{r}, \mathbf{r}_p) \overset{\leftrightarrow}{\alpha} \overset{\leftrightarrow}{\mathbf{G}}^0(\mathbf{r}_p, \mathbf{r}_0) \quad (27)$$

При маленьких расстояниях между молекулой и частицей, поверхность частицы можно считать плоской. В этом случае, интегрируя по полупространству (23), можно получить формулу [31]

$$\frac{\gamma_{\text{abs}}}{\gamma_r^0} = \frac{3}{16} \text{Im} \frac{\varepsilon(\omega_1) - 1}{\varepsilon(\omega_1) + 2} \cdot \frac{2}{k_2^3 z^3} \frac{(p_x^2 + p_y^2 + 2p_z^2)}{|\mathbf{p}|^2}, \quad (28)$$

где z — расстояние между молекулой и поверхностью частицы, $\mathbf{p} = \{p_x, p_y, p_z\}$. Считая $p_x = p_y = 0$, получим

$$\frac{\gamma_{\text{abs}}}{\gamma_r^0} = \frac{3}{16} \text{Im} \frac{\varepsilon(\omega_1) - 1}{\varepsilon(\omega_1) + 2} \cdot \frac{2}{k_2^3 z^3} \quad (29)$$

Далее, учитывая, что γ_r пропорциональна мощности, излучаемой классическим диполем [2], а эта мощность пропорциональна $|\mathbf{p}|^2$, получим

$$\frac{\gamma_r}{\gamma_r^0} = \frac{|\mathbf{p} + \mathbf{p}_{\text{induced}}|^2}{|\mathbf{p}|^2} = \frac{|\mathbf{p} + \overset{\leftrightarrow}{\alpha} \mathbf{E}_m(\mathbf{r}_p)|^2}{|\mathbf{p}|^2} = \frac{|\mathbf{p} + \overset{\leftrightarrow}{\alpha} \frac{k^2}{\varepsilon_0} \overset{\leftrightarrow}{\mathbf{G}}^0(\mathbf{r}_p, \mathbf{r}_0) \mathbf{p}|^2}{|\mathbf{p}|^2} = \left| \mathbf{n}_p + \frac{k^2}{\varepsilon_0} \overset{\leftrightarrow}{\alpha} \overset{\leftrightarrow}{\mathbf{G}}^0(\mathbf{r}_p, \mathbf{r}_0) \mathbf{n}_p \right|^2, \quad (30)$$

где \mathbf{n}_p — единичный вектор в направлении дипольного момента молекулы.

Учитывая, что $p_x = p_y = 0$ и выражение для $\overset{\leftrightarrow}{\alpha}$ (25), получим

$$\frac{\gamma_r}{\gamma_r^0} = \left| 1 + 2 \frac{a^3}{(a+z)^3} \frac{\varepsilon(\omega) - 1}{\varepsilon(\omega) + 2} \right|^2 \quad (31)$$

Если \mathbf{E}_0 — поле падающего на систему лазерного излучения, а \mathbf{E}_s — поле, переизлучаемое частицей, то в случае слабого возбуждения и размеров частицы меньше длины волны $\gamma_{\text{exc}} \propto |\mathbf{p} \cdot [\mathbf{E}_0(\mathbf{r}_0) + \mathbf{E}_s(\mathbf{r}_0)]|^2$, где ω_1 — частота падающего поля. Выражая \mathbf{E}_s при помощи функции Грина, получим

$$\frac{\gamma_{\text{exc}}}{\gamma_{\text{exc}}^0} = \frac{|\mathbf{p} \cdot [\mathbf{E}_0(\mathbf{r}_0) + \mathbf{E}_s(\mathbf{r}_0)]|^2}{|\mathbf{p} \cdot \mathbf{E}_0(\mathbf{r}_0)|^2} = \frac{|\mathbf{p} \cdot [\mathbf{E}_0(\mathbf{r}_0) + \frac{k^2}{\varepsilon_0} \overset{\leftrightarrow}{\mathbf{G}}^0(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_p) \overset{\leftrightarrow}{\alpha} \mathbf{E}_0(\mathbf{r}_p)]|^2}{|\mathbf{p} \cdot \mathbf{E}_0(\mathbf{r}_0)|^2}. \quad (32)$$

Если размеры частицы много меньше длины волны, то $\mathbf{E}_0(\mathbf{r}_p) = \mathbf{E}_0(\mathbf{r}_0)$, тогда

$$\frac{\gamma_{\text{exc}}}{\gamma_{\text{exc}}^0} = \frac{|\mathbf{n}_p \cdot [\mathbf{I} + \frac{k^2}{\varepsilon_0} \overset{\leftrightarrow}{\mathbf{G}}(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_p) \overset{\leftrightarrow}{\alpha}] \mathbf{n}_{E_0}|^2}{|\mathbf{n}_p \cdot \mathbf{n}_{E_0}|^2}, \quad (33)$$

где \mathbf{n}_{E_0} — единичный вектор в направлении \mathbf{E}_0 . Используя выражение для поляризуемости (25), получим

$$\frac{\gamma_{\text{exc}}}{\gamma_{\text{exc}}^0} = \left| 1 + 2 \frac{a^3}{(a+z)^3} \frac{\varepsilon(\omega) - 1}{\varepsilon(\omega) + 2} \right|^2 \quad (34)$$

Таким образом, используя формулы (15), (20), (29), (31), (34), можно рассчитать усиление флуоресценции молекулы рядом с частицей.

Результаты совпадают с результатами в [16].

Получены зависимости:

- Зависимость скоростей возбуждения $\gamma_{\text{exc}}/\gamma_{\text{exc}}^0$, затухания в частице $\gamma_{\text{abs}}/\gamma_r^0$, квантового выхода q и усиления флуоресценции $\gamma_{\text{em}}/\gamma_{\text{em}}^0$ от расстояния между молекулой и частицей при длине волны падающего излучения $\lambda = 650$ нм (рис. 19);
- Зависимость усиления флуоресценции от размера наносферы a . Длина падающей волны $\lambda = 650$ нм, $q_0 = 1$ (рис. 20).
- Зависимость усиления флуоресценции для золотой и серебряной сферических частиц в зависимости от длины волны падающего излучения (рис. 21).

На основе полученных результатов можно сделать следующие выводы:

- при помощи сферической наноантенны можно добиться усиления флуоресценции одиночной молекулы. При этом, при приближении молекулы на расстояния около 10 нм и меньше усиление флуоресценции переходит в её гашение и стремиться к нулю непосредственно на поверхности наноантенны;

- при помощи сферической наноантенны можно улучшать квантовый выход молекул с первоначально низким квантовым выходом. Квантовый выход равный 1 можно только уменьшить (что естественно, т.к. он не может быть больше 1). Из-за гашения флуоресценции непосредственно вблизи поверхности наноантенны квантовый выход при приближении молекулы к поверхности стремиться к нулю.

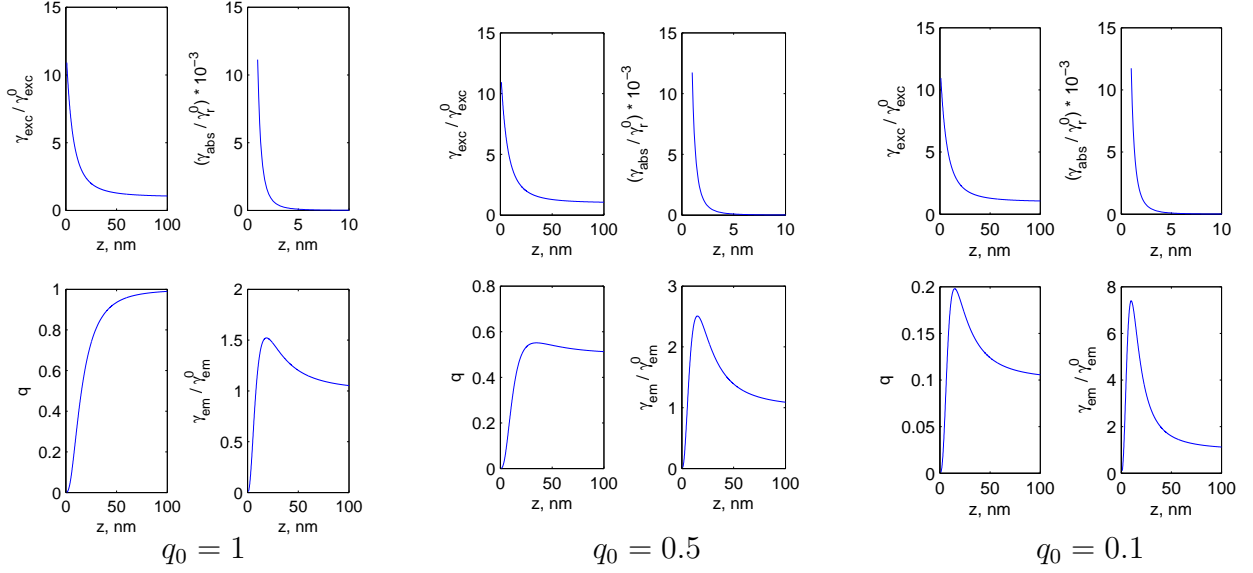


Рис. 19: Зависимость скоростей возбуждения $\gamma_{\text{exc}}/\gamma_{\text{exc}}^0$, затухания в частице $\gamma_{\text{abs}}/\gamma_r^0$, квантового выхода q и усиления флуоресценции $\gamma_{\text{em}}/\gamma_{\text{em}}^0$ от расстояния между молекулой и частицей при длине волны падающего излучения $\lambda = 650$ нм. Материал частицы — золото.

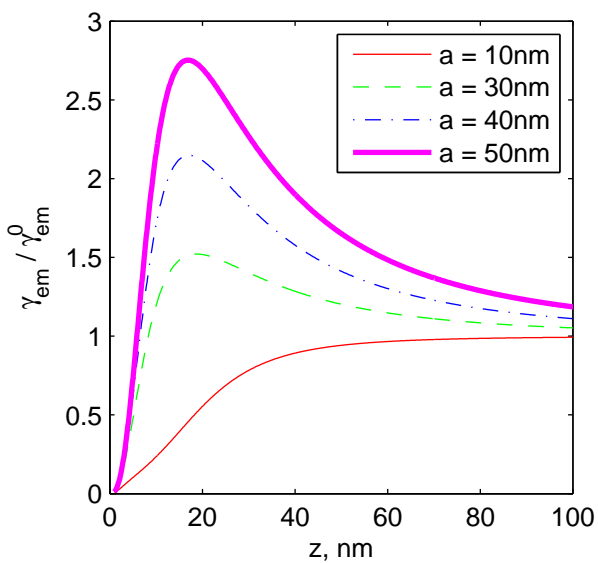


Рис. 20: Зависимость усиления флуоресценции от размера наносферы a . Длина падающей волны $\lambda = 650$ нм, $q_0 = 1$, материал частицы — золото.

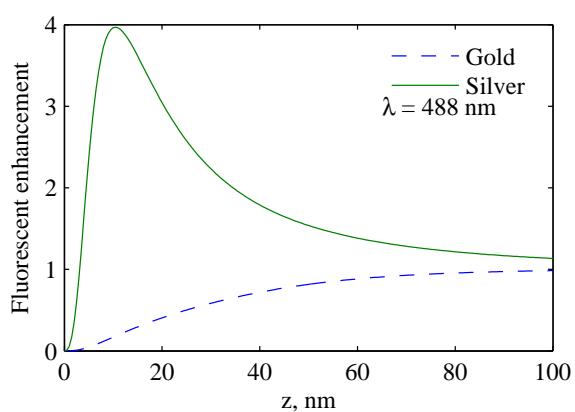
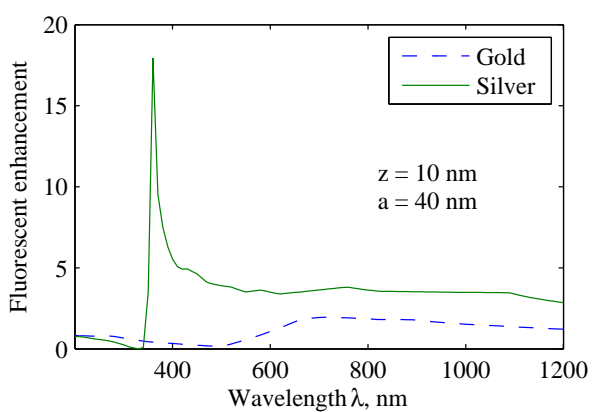


Рис. 21: Усиление флуоресценции для золотой и серебряной сферических частиц в зависимости от (а) длины волны падающего излучения при $z = 10$ нм, (б) от расстояния между частицей и молекулой z при $\lambda = 488$ нм.

Список литературы

- [1] Mark L. Brongersma. “Engineering optical nanoantennas”. In: *Nature Photon.* 2 (2008), pp. 270–272.
- [2] Palash Bharadwaj, Bradley Deutsch, и Lukas Novotny. “Optical Antennas”. In: *Adv. Opt. Photon.* 1.3 (2009), pp. 438–483. URL: <http://aop.osa.org/abstract.cfm?URI=aop-1-3-438>.
- [3] Lukas Novotny и Niek van Hulst. “Antennas for light”. In: *Nat Photon* 5.2 (Feb. 2011), pp. 83–90. ISSN: 1749-4885. URL: <http://dx.doi.org/10.1038/nphoton.2010.237>.
- [4] Anika Kinkhabwala et al. “Large single-molecule fluorescence enhancements produced by a bowtie nanoantenna”. In: *Nature Photon.* 3 (2009), pp. 654–657.
- [5] Ying Gu et al. “Resonance fluorescence of single molecules assisted by a plasmonic structure”. In: *Phys. Rev. B* 81.19 (May 2010), p. 193103. DOI: 10.1103/PhysRevB.81.193103.
- [6] В.В. Климов. *Наноплазмоника*. Москва: ФИЗМАТЛИТ, 2009.
- [7] Maxim Sukharev и Tamar Seideman. “Optical Properties of Metal Tips for Tip-Enhanced Spectroscopies”. In: *J. Phys. Chem. A* 113 (2009), pp. 7508–7513.
- [8] Wenshan Cai и Vladimir Shalaev. *Optical Metamaterials. Fundamentals and Applications*. Springer, 2010.
- [9] Nikolay I. Zheludev. “The Road Ahead for Metamaterials”. In: *Science* 328.5978 (2010), pp. 582–583. DOI: 10.1126/science.1186756. eprint: <http://www.sciencemag.org/content/328/5978/582.full.pdf>. URL: <http://www.sciencemag.org/content/328/5978/582.short>.
- [10] N. I. Zheludev. “A Roadmap for Metamaterials”. In: *Optics & Photonics News* 22 (2011), pp. 30–35.
- [11] Ю.Е. Терехов, А.В. Журавлёв, и Г.В. Белокопытов. “Матрица поляризуемости П-образных металлических нанорезонаторов”. 2011.
- [12] Arvind Sundaramurthy et al. “Field enhancement and gap-dependent resonance in a system of two opposing tip-to-tip Au nanotriangles”. In: *Phys. Rev. B* 72.16 (Oct. 2005), p. 165409. DOI: 10.1103/PhysRevB.72.165409.
- [13] Lukas Novotny. “Effective Wavelength Scaling for Optical Antennas”. In: *Phys. Rev. Lett.* 98.26 (June 2007), p. 266802. DOI: 10.1103/PhysRevLett.98.266802.
- [14] Pascal Anger, Palash Bharadwaj, и Lukas Novotny. “Enhancement and Quenching of Single-Molecule Fluorescence”. In: *Phys. Rev. Lett.* 96.11 (2006), p. 113002. DOI: 10.1103/PhysRevLett.96.113002.
- [15] Palash Bharadwaj, Pascal Anger, и Lukas Novotny. “Nanoplasmonic enhancement of single-molecule fluorescence”. In: *Nanotechnology* 18.4 (2007), p. 044017. URL: <http://stacks.iop.org/0957-4484/18/i=4/a=044017>.
- [16] Palash Bharadwaj и Lukas Novotny. “Spectral dependence of single molecule fluorescence enhancement”. In: *Opt. Express* 15.21 (2007), pp. 14266–14274. URL: <http://www.opticsexpress.org/abstract.cfm?URI=oe-15-21-14266>.
- [17] Sergei Kühn et al. “Enhancement of Single-Molecule Fluorescence Using a Gold Nanoparticle as an Optical Nanoantenna”. In: *Phys. Rev. Lett.* 97.1 (July 2006), p. 017402. DOI: 10.1103/PhysRevLett.97.017402.

- [18] В. В. Климов. “Спонтанное излучение атомного осциллятора, расположенного вблизи идеально проводящей конической поверхности”. In: *Письма в ЖЭТФ* 68 (1998), pp. 610–613.
- [19] V. V Klimov и Y. A. Perventsev. “Variation of the emission characteristics of an atom located near an ideally conducting conical surface”. In: *Quantum Electronics* 29.10 (1999), p. 847. URL: <http://stacks.iop.org/1063-7818/29/i=10/a=A03>.
- [20] V V Klimov, M Ducloy, и V S Letokhov. “Spontaneous emission of an atom in the presence of nanobodies”. In: *Quantum Electronics* 31.7 (2001), p. 569. URL: <http://stacks.iop.org/1063-7818/31/i=7/a=R03>.
- [21] D V Guzatov. “Frequency shift of radiation of an atom near a cluster of two perfectly conducting spherical nanoparticles”. In: *Quantum Electronics* 35.10 (2005), p. 901. URL: <http://stacks.iop.org/1063-7818/35/i=10/a=A03>.
- [22] D V Guzatov и V V Klimov. “Properties of spontaneous radiation of an atom located near a cluster of two spherical nanoparticles”. In: *Quantum Electronics* 35.10 (2005), p. 891. URL: <http://stacks.iop.org/1063-7818/35/i=10/a=A02>.
- [23] V V Klimov и D V Guzatov. “Optical properties of an atom in the presence of a two-nanosphere cluster”. In: *Quantum Electronics* 37.3 (2007), p. 209. URL: <http://stacks.iop.org/1063-7818/37/i=3/a=A02>.
- [24] D.V. Guzatov и V.V. Klimov. “Optical properties of a plasmonic nano-antenna: Analytical approach”. 2011.
- [25] G. Sun и J. B. Khurgin. “Theory of optical emission enhancement by coupled metal nanoparticles: An analytical approach”. In: *Applied Physics Letters* 98.11, 113116 (2011), p. 113116. DOI: 10.1063/1.3565170. URL: <http://link.aip.org/link/?APL/98/113116/1>.
- [26] M. Ringler et al. “Shaping Emission Spectra of Fluorescent Molecules with Single Plasmonic Nanoresonators”. In: *Phys. Rev. Lett.* 100.20 (May 2008), p. 203002. DOI: 10.1103/PhysRevLett.100.203002.
- [27] E. M. Purcell. “Spontaneous Emission Probabilities at Radio Frequencies”. In: *Phys. Rev.* 69.11-12 (June 1946). E.M.Purcell, *Phys.Rev.*69, 681 (1946) *Phys. Rev. Proceedings of the American Physical Society*, 69, 674 (1946), p. 681. DOI: 10.1103/PhysRev.69.674.2.
- [28] V. I. Balykin. “Parallel fabrication of nanostructures via atom projection”. In: *Physics-Uspokhi* 50.7 (2007), pp. 744–749. DOI: 10.1070/PU2007v050n07ABEH006322. URL: <http://ufn.ru/en/articles/2007/7/g/>.
- [29] P. B. Johnson и R. W. Christy. “Optical Constants of the Noble Metals”. In: *Phys. Rev. B* 6 (1972), pp. 4370–4379.
- [30] Ertugrul Cubukcu et al. “Plasmonic Laser Antennas and Related Devices”. In: *IEEE JOURNAL OF SELECTED TOPICS IN QUANTUM ELECTRONICS* 14 (2008), pp. 1448–1461.
- [31] Lukas Novotny и Bert Hecht. *Principles of Nano-Optics*. Cambridge University Press, Cambridge, 2006.
- [32] Stephen M Barnett et al. “Decay of excited atoms in absorbing dielectrics”. In: *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* 29.16 (1996), p. 3763. URL: <http://stacks.iop.org/0953-4075/29/i=16/a=019>.
- [33] J.D. Jackson. *Classical electrodynamics*. John Wiley & Sons, 1999.

- [34] Лукас Новотный и Берт Хехт. *Основы нанооптики*. Ed. by В.В. Самарцев. Физматлит, 2009.
- [35] М.О. Скалли и М.С. Зубайри. *Квантовая оптика*. Ed. by В.В. Самарцев. Quantum Optics, Scully, M.O. and Zubairy, M.S. Москва, Физматлит, 2003.
- [36] B. R. Mollow. “Power Spectrum of Light Scattered by Two-Level Systems”. In: *Phys. Rev.* 188.5 (Dec. 1969), pp. 1969–1975. DOI: 10.1103/PhysRev.188.1969.
- [37] I. V. Bargatin и В. А. Grishanin. “Fluorescence and Absorption Spectra of the L-System in the Case of Raman Resonance”. In: *Optics and Spectroscopy* 87 (1999), pp. 367–375.
- [38] Yong Xu, Reginald K. Lee, и Amnon Yariv. “Finite-difference time-domain analysis of spontaneous emission in a microdisk cavity”. In: *Phys. Rev. A* 61.3 (Feb. 2000), p. 033808. DOI: 10.1103/PhysRevA.61.033808.