

РОССИЙСКАЯ АКАДЕМИЯ НАУК

**ФИЗИЧЕСКИЙ
ИНСТИТУТ**



*имени
П.Н.Лебедева*

Ф И А Н

ПРЕПРИНТ

26

В.С. ЗУЕВ

**СПОНТАННОЕ ИЗЛУЧЕНИЕ АТОМА
В ОДНОРОДНОМ И НЕОДНОРОДНОМ
ПРОСТРАНСТВАХ**

МОСКВА 2006

Спонтанное излучение атома в однородном и неоднородном пространствах

В.С.Зуев

Физический ин-т им. П.Н.Лебедева РАН

С целью выяснения соотношения между вероятностями излучательного спонтанного перехода в свободном пространстве и в неоднородном пространстве с наносфероидом рассчитаны поле \vec{E} и плотность состояний ρ_E в моде \vec{n}_{10} свободного пространства и в моде TM_0 наноцилиндра. Наноцилиндр приближенно моделирует наносфероид. Вероятность спонтанного перехода в каждом из 2-х случаев пропорциональна $\vec{E}^2 \rho_E$. Излучение в моду наносфероида на многие порядки превышает вероятность спонтанного излучения в свободном пространстве.

Атом, излучающий в поверхностный плазмон наносфероида

Поле наносфероида рассмотрим приближенно, так, как это сделано в работе /1/. Наносфероид будет заменен наноцилиндром. Среди мод цилиндра при малом диаметре актуальной является мода $\vec{n}_{0\gamma} \cdot e^{ihz}$, существующая на цилиндре любого диаметра, как бы мал этот диаметр не был. Эта мода имеет нулевую критическую частоту. Эту моду будем называть поверхностной TM_0 волной (TM_0 плазмоном). Магнитное поле TM_0 волны имеет только одну поперечную θ -компоненту. Функция $\vec{n}_{0\gamma}$ имеет вид /2/:

$$\vec{n}_{0\lambda} = \frac{ih}{\sqrt{k^2}} \frac{d}{dr} Z_0(\lambda r) \cdot \vec{i}_r + \frac{\lambda^2}{\sqrt{k^2}} Z_0(\lambda r) \cdot \vec{i}_z. \quad (1)$$

Формула (1) описывает поле как внутри цилиндра, среда $i = 1$, так и вне его, среда $i = 2$, но в разных средах содержит разные цилиндрические функции и две различные пары значений k^2 и γ , а именно k_1^2 , $\gamma_1^2 = k_1^2 - h^2$ и k_2^2 , $\gamma_2^2 = k_2^2 - h^2$. TM_0 волна – неоднородная волна, $k_1^2 < 0$, $0 < k_2^2 < |k_1^2|$, $h^2 > k_1^2, k_2^2$, $\gamma_1^2, \gamma_2^2 < 0$. Внутри цилиндра вместо $Z_0(\gamma r)$ следует выбрать $J_0(\gamma_1 r)$, вне цилиндра – $H_0^{(1)}(\gamma_2 r)$. Эти функции имеют мнимый аргумент, что позднее учтем и перейдем к модифицированным бесселевым функциям.

Зададим электрическую напряженность \vec{E} , а по уравнению $\nabla \times \vec{E} - i \frac{\mu\omega}{c} \vec{H} = 0$ определим соответствующее \vec{H} . Используем соотношение $\frac{dZ_0(\rho)}{d\rho} = -Z_1(\rho)$.

$$\vec{E} = E \vec{n}_{0\lambda} e^{ihz} = E \left[-\frac{ih\lambda}{\sqrt{k^2}} Z_1(\lambda r) \cdot \vec{i}_r + \frac{\lambda^2}{\sqrt{k^2}} Z_0(\lambda r) \cdot \vec{i}_z \right] e^{ihz}, \quad (2)$$

$$\vec{H} = -i \frac{c}{\omega\mu} \nabla \times \vec{E}. \quad (3)$$

В цилиндрических координатах r, θ, z имеем

$$\nabla \times \vec{F} = \left(\frac{1}{r} \frac{\partial F_z}{\partial \theta} - \frac{\partial F_\theta}{\partial z} \right) \cdot \vec{i}_r + \left(\frac{\partial F_r}{\partial z} - \frac{\partial F_z}{\partial r} \right) \cdot \vec{i}_\theta + \left[\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (r F_\theta) - \frac{1}{r} \frac{\partial F_r}{\partial \theta} \right] \cdot \vec{i}_z. \quad (4)$$

Для поля вида (2) с отличными от нуля компонентами E_r и E_z , независящими от θ , и $E_\theta = 0$ получим

$$\nabla \times \vec{E} = \left(\frac{\partial E_r}{\partial z} - \frac{\partial E_z}{\partial r} \right) \cdot \vec{i}_\theta, \quad (\nabla \times \vec{E})_\theta = -E \left(\frac{h^2 \lambda}{\sqrt{k^2}} + \frac{\lambda^3}{\sqrt{k^2}} \right) Z_1(\lambda r) e^{ihz} \quad (5)$$

Итак, поля имеют вид

$$E_r = \begin{cases} E_1 \frac{h \gamma_1}{\kappa_1} I_1(\gamma_1 r) e^{ihz} \\ -E_2 \frac{h \gamma_2}{k_2} K_1(\gamma_2 r) e^{ihz} \end{cases}, \quad E_z = \begin{cases} E_1 \frac{i \gamma_1^2}{\kappa_1} I_0(\gamma_1 r) e^{ihz} \\ E_2 \frac{i \gamma_2^2}{k_2} K_0(\gamma_2 r) e^{ihz} \end{cases}, \quad H_\theta = \begin{cases} \gamma_1 \sqrt{\frac{|\varepsilon_1|}{\mu_1}} E_1 I_1(\gamma_1 r) e^{ihz} \\ \gamma_2 \sqrt{\frac{\varepsilon_2}{\mu_2}} E_2 K_1(\gamma_2 r) e^{ihz} \end{cases}. \quad (6)$$

Внутри цилиндра - среда $i = 1$, вне - среда $i = 2$. $\varepsilon_1 < 0$, $h^2 + \lambda_i^2 = k_i^2$. Обе $\lambda_i^2 < 0$, поэтому введены $\gamma_i^2 = -\lambda_i^2$, $\kappa_1^2 = -k_1^2$. В (6) произведена замена цилиндрических функций на модифицированные функции по формулам (7). Множитель $2/\pi$ включен в E_2 .

$$\begin{aligned} I_n(|\gamma| r) &= \exp(-in\pi/2) J_n(i|\gamma| r), \quad J_0(i|\gamma| r) = I_0(|\gamma| r), \quad J_1(i|\gamma| r) = iI_1(|\gamma| r). \\ K_n(|\gamma| r) &= (i\pi/2) \exp(in/\pi) H_n^{(1)}(i|\gamma| r), \quad H_0^{(1)}(i|\gamma| r) = -i(2/\pi) K_0(|\gamma| r), \\ H_1^{(1)}(i|\gamma| r) &= -(2/\pi) K_1(|\gamma| r). \end{aligned} \quad (7)$$

Теперь составляем уравнения граничных условий равенства тангенциальных компонент полей, составляем детерминант полученной системы и в итоге получаем характеристическое уравнение:

$$\frac{\gamma_1}{\gamma_2} \frac{\varepsilon_2}{|\varepsilon_1|} \frac{K_1(\gamma_2 a)}{K_0(\gamma_2 a)} = \frac{I_1(\gamma_1 a)}{I_0(\gamma_1 a)}. \quad (8)$$

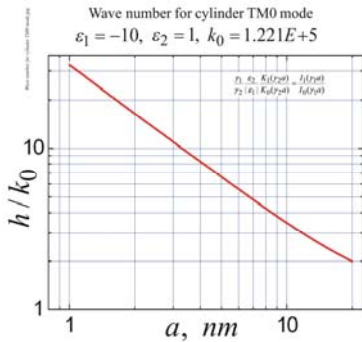


Рис.1.

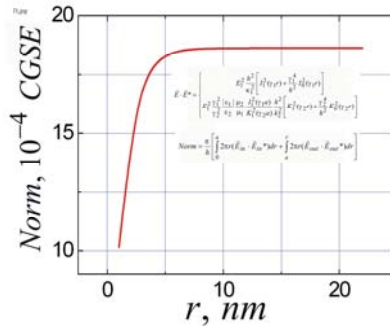


Рис.2.

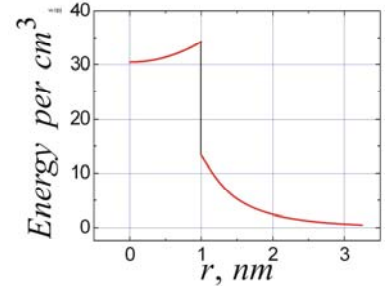


Рис.3. Плотность энергии в зависимости от радиуса для наночилндра радиуса 1 нм.

Определяем связь между амплитудами:

$$E_2 = E_1 \frac{\gamma_1^2}{\gamma_2^2} \sqrt{\frac{\varepsilon_2 \mu_2}{|\varepsilon_1| \mu_1}} \frac{I_0(\gamma_1 a)}{K_0(\gamma_2 a)}. \quad (9)$$

Отношение амплитуд:

1	2	4	6	8	10	20
0.298	0.308	0.346	0.411	0.502	0.621	1.691

Теперь пронормируем поле, приравняв энергию поля в моде одному фотону. Мгновенное значение плотности энергии э.-м. поля в плазме выражается формулой

$$w = \frac{1}{8\pi} (\vec{E} \cdot \vec{E}) + \frac{1}{8\pi} (\vec{H} \cdot \vec{H}) + \frac{m_e v_e^2}{2} n_e \quad (10)$$

В формулу для энергии (10) поля должны быть взяты в вещественной форме.

$$\begin{aligned} E_{1r} &= E_1 \frac{h\gamma_1}{\kappa_1} I_1(\gamma_1 r) \cos(hz - \omega t), & E_{1z} &= -E_1 \frac{\gamma_1^2}{\kappa_1} I_0(\gamma_1 r) \sin(hz - \omega t), & H_{1\theta} &= \gamma_1 \sqrt{\frac{|\varepsilon_1|}{\mu_1}} E_1 I_1(\gamma_1 r) \cos(hz - \omega t). \\ E_{2r} &= -E_2 \frac{h\gamma_2}{k_2} K_1(\gamma_2 r) \cos(hz - \omega t) & E_{2z} &= -E_2 \frac{\gamma_2^2}{k_2} K_0(\gamma_2 r) \sin(hz - \omega t) & H_{2\theta} &= \gamma_2 \sqrt{\frac{\varepsilon_2}{\mu_2}} E_2 K_1(\gamma_2 r) \cos(hz - \omega t) \end{aligned} \quad (11)$$

Энергию единицы объема плазмы рекомендуют брать в виде $(E^2 + H^2)/8\pi + n_e m_e v_e^2/2$. Плотность электронов n_e определим из $\varepsilon_{pl} = 1 - \omega_{pl}^2/\omega^2$ для плазмы, где $\omega_{pl}^2 = 4\pi e^2 n_e / m_e$. Энергия электрона равна $m_e v_e^2/2$, $m_e dv_e/dt = eE_0 e^{-i\omega t}$, $v_e = -(eE_0/\omega m_e) \sin \omega t$, $\frac{m_e v_e^2}{2} = \frac{m_e}{2} \frac{e^2 E_0^2}{\omega^2 m_e^2} \sin^2 \omega t$. Энер-

гия электронов в единице объема равна $w_e = \frac{1}{8\pi} \frac{\omega_{pl}^2}{\omega^2} E_0^2 \sin^2 \omega t = \frac{1}{8\pi} (1 - \varepsilon_{pl}) E_0^2 \sin^2 \omega t$. Таким обра-

зом энергия тела с отрицательным ε (плазма) равна $w = \frac{1}{8\pi} [(2 - \varepsilon)E^2 + \mu H^2]$, хотя, казалось бы, она должна быть равна $w = \frac{1}{8\pi} (-\varepsilon E^2 + \mu H^2)$. При большом $|\varepsilon|$ разница в формулах не велика.

Теперь вычисляем квадраты полей.

$$\begin{aligned} (\vec{E}_1 \cdot \vec{E}_1) &= E_1^2 \frac{\gamma_1^2}{\kappa_1^2} \left[h^2 I_1^2(\gamma_1 r) \cos^2(hz - \omega t) + \gamma_1^2 I_0^2(\gamma_1 r) \sin^2(hz - \omega t) \right], \\ (\vec{E}_2 \cdot \vec{E}_2) &= E_2^2 \frac{\gamma_2^2}{k_2^2} \left[h^2 K_1^2(\gamma_2 r) \cos^2(hz - \omega t) + \gamma_2^2 K_0^2(\gamma_2 r) \sin^2(hz - \omega t) \right], \\ (\vec{H}_1 \cdot \vec{H}_1) &= \gamma_1^2 \frac{|\varepsilon_1|}{\mu_1} E_1^2 I_1^2(\gamma_1 r) \cos^2(hz - \omega t), \\ (\vec{H}_2 \cdot \vec{H}_2) &= \gamma_2^2 \frac{\varepsilon_2}{\mu_2} E_2^2 K_1^2(\gamma_2 r) \cos^2(hz - \omega t), \end{aligned} \quad (12)$$

$$w_1 = [(2 - \varepsilon_1)E_1^2 + \mu_1 H_1^2]/8\pi, \quad w_2 = (\varepsilon_2 E_2^2 + \mu_2 H_2^2)/8\pi. \quad (13)$$

$$\begin{aligned} w_1 &= \frac{E_1^2}{8\pi} (2 + |\varepsilon_1|) \frac{\gamma_1^2}{\kappa_1^2} \left[\left(h^2 + \frac{\kappa_1^2 |\varepsilon_1|}{(2 + |\varepsilon_1|)} \right) I_1^2(\gamma_1 r) \cos^2(hz - \omega t) + \gamma_1^2 I_0^2(\gamma_1 r) \sin^2(hz - \omega t) \right], \\ w_2 &= \frac{E_2^2}{8\pi} \varepsilon_2 \frac{\gamma_2^2}{\kappa_1^2} \left[\frac{\gamma_1^2}{\gamma_2^2} \frac{I_0^2(\gamma_1 a)}{K_0^2(\gamma_2 a)} \right] \left[(h^2 + k_2^2) K_1^2(\gamma_2 r) \cos^2(hz - \omega t) + \gamma_2^2 K_0^2(\gamma_2 r) \sin^2(hz - \omega t) \right]. \end{aligned} \quad (14)$$

Формулы для расчета, $A^2 = \frac{E_1^2 \gamma_1^2 \pi}{8\pi \kappa_1^2 2h}$, $\int_0^\pi \cos^2 x dx = \int_0^\pi \sin^2 x dx = \pi / 2$:

$$\begin{aligned} \bar{w}_1 &= (2 + |\varepsilon_1|) A^2 \left[\left(h^2 + \frac{\kappa_1^2 |\varepsilon_1|}{(2 + |\varepsilon_1|)} \right) I_1^2(\gamma_1 r) + \gamma_1^2 I_0^2(\gamma_1 r) \right], \\ \bar{w}_2 &= \varepsilon_2 A^2 \left[\frac{\gamma_1^2 I_0^2(\gamma_1 a)}{\gamma_2^2 K_0^2(\gamma_2 a)} \right] [(h^2 + k_2^2) K_1^2(\gamma_2 r) + \gamma_2^2 K_0^2(\gamma_2 r)]. \end{aligned} \quad (15)$$

Отношение энергии в наноцилиндре к энергии вне наноцилиндра равно приблизительно 1.2 для $a = 1 \div 5 \text{ nm}$ и для $\varepsilon_2 = 1 \div 9$.

$$W = 2\pi A^2 \left(\int_0^a r \bar{w}_1 dr + \int_a^\infty r \bar{w}_2 dr \right)_{a=1 \text{ nm}} = 11.864 A^2 = 11.864 \frac{E_1^2 \gamma_1^2 \pi}{8\pi \kappa_1^2 2h}. \quad (16)$$

В итоге получаем:

$$E_1^2 = \frac{16h}{11.864} \frac{\kappa_1^2}{\gamma_1^2} \hbar \omega. \quad (16')$$

Плотность состояний для данной моды /1/:

$$\rho_E = \frac{Q}{\hbar \omega}. \quad (16'')$$

Теперь вычислим поле в разрезе \vec{E}_{gap} , которое равно \vec{D}_1 . Поскольку

$$E_{1z} = -E_1 \frac{\gamma_1^2}{\kappa_1} I_0(\gamma_1 r) \sin(hz - \omega t),$$

то

$$\vec{E}_{gap} = -\varepsilon_1 E_1 \frac{\gamma_1^2}{\kappa_1} I_0(\gamma_1 r = 0) \sin[(hz = h\lambda_{pl}/2) - \omega t] = -\varepsilon_1 E_1 \frac{\gamma_1^2}{\kappa_1}.$$

Спонтанное излучение атома в свободном пространстве с излучением в сферические моды

Спонтанное излучение атома в свободном пространстве с излучением в сферические моды было рассмотрено в работе /3/. Отметим, что представление поля в свободном пространстве в виде набора плоских волн или набора сферических волн не меняет конечного результата, а именно, величины вычисляемой вероятности спонтанного перехода.

Если начало системы r, θ, φ находится в точке расположения атома и полярная ось совпадает с \vec{p} , импульсом оптического электрона в атоме, то среди всех мод актуальной является единственная мода \vec{n}_{10} .

Эта мода выглядит так /2/:

$$\vec{n}_{10} = 2P_1(\cos \theta) \frac{j_1(\rho)}{\rho} \cdot \vec{i}_r + \frac{d}{d\theta} P_1(\cos \theta) \frac{1}{\rho} \frac{d}{d\rho} [\rho j_1(\rho)] \cdot \vec{i}_\theta. \quad (17)$$

С учетом формул

$$P_1(\cos \theta) = \cos \theta, \quad \frac{1}{\rho} \frac{d}{d\rho} [\rho j_1(\rho)] = \frac{1}{3} [2j_0(\rho) - j_2(\rho)], \quad (18)$$

$$\frac{1}{\rho} j_1(\rho) = \frac{1}{3} [j_0(\rho) + j_2(\rho)], \quad j_2 = \frac{3}{\rho} j_1 - j_0.$$

получаем

$$\bar{n}_{10} = \frac{2}{3} (j_0 + j_2) \cos \theta \cdot \vec{i}_r - \frac{1}{3} (2j_0 - j_2) \sin \theta \cdot \vec{i}_\theta, \quad (19)$$

$$\bar{n}_{10} = \frac{2}{\rho} j_1 \cos \theta \cdot \vec{i}_r - (j_0 - \frac{1}{\rho} j_1) \sin \theta \cdot \vec{i}_\theta.$$

Зададим электрическую напряженность \vec{E}

$$\vec{E} = E \bar{n}_{10} = E \left[\frac{2}{\rho} j_1 \cos \theta \cdot \vec{i}_r - (j_0 - \frac{1}{\rho} j_1) \sin \theta \cdot \vec{i}_\theta \right], \quad (20)$$

а по уравнению $\nabla \times \vec{E} - i \frac{\mu \omega}{c} \vec{H} = 0$ определим соответствующее \vec{H} . Вместо прямого вычисления $\nabla \times \vec{E}$ воспользуемся готовым результатом, а именно связью между функциями \bar{n}_{10} и \bar{m}_{10} [2]:

$$\bar{m}_{10} = \frac{1}{k} \nabla \times \bar{n}_{10}, \quad \vec{H} = -i \frac{c}{\mu \omega} \nabla \times \vec{E} = -i E \sqrt{\frac{\varepsilon}{\mu}} \frac{1}{k} \nabla \times \bar{n}_{10} = -i E \sqrt{\frac{\varepsilon}{\mu}} \bar{m}_{10}. \quad (21)$$

$$\bar{m}_{10} = -j_1(\rho) \frac{d}{d\theta} P_1(\cos \theta) \cdot \vec{i}_\varphi = j_1(\rho) \sin \theta \cdot \vec{i}_\varphi, \quad \vec{H} = -i E \sqrt{\frac{\varepsilon}{\mu}} j_1(\rho) \sin \theta \cdot \vec{i}_\varphi. \quad (22)$$

С учетом временного множителя поля имеют вид:

$$\vec{E}(t) = E \left\{ \frac{2}{\rho} j_1(\rho) \cos \theta \cdot \vec{i}_r - \left[j_0(\rho) - \frac{1}{\rho} j_1(\rho) \right] \sin \theta \cdot \vec{i}_\theta \right\} e^{-i\omega t}, \quad (23)$$

$$\vec{H}(t) = -i E \sqrt{\frac{\varepsilon}{\mu}} j_1(\rho) \sin \theta e^{i\omega t} \cdot \vec{i}_\varphi.$$

В действительной форме поля имеют вид:

$$\vec{E}(t) = E \left\{ \frac{2}{\rho} j_1(\rho) \cos \theta \cdot \vec{i}_r - \left[j_0(\rho) - \frac{1}{\rho} j_1(\rho) \right] \sin \theta \cdot \vec{i}_\theta \right\} \cos \omega t, \quad (24)$$

$$\vec{H}(t) = -E \sqrt{\frac{\varepsilon}{\mu}} j_1(\rho) \sin \theta \sin \omega t \cdot \vec{i}_\varphi.$$

Выбираем такой момент времени, когда $\cos \omega t = 0$, $\sin \omega t = 1$. Мгновенная плотность энергии поля равна

$$w = \varepsilon \frac{(\vec{E})^2}{8\pi} + \mu \frac{(\vec{H})^2}{8\pi} = \frac{\varepsilon E^2 j_1^2(\rho) \sin^2 \theta}{8\pi}. \quad (25)$$

Полная энергия в моде

$$\begin{aligned}
 W &= 2\pi \int_0^\pi \sin \theta d\theta \int_0^\infty r^2 w(r, \theta) dr = \frac{\varepsilon}{4} E^2 \int_0^\pi (1 - \cos^2 \theta) \sin \theta d\theta \int_0^\infty r^2 j_1^2(\rho) dr = \\
 &= \frac{\varepsilon}{4} E^2 \int_0^1 (1 - x^2) dx \int_0^\infty r^2 j_1^2(kr) dr \underset{kr \gg 1}{\approx} \frac{\varepsilon}{3} E^2 \int_0^R \frac{\rho^2}{k^3} \frac{\cos^2 \rho}{\rho^2} d\rho = \frac{\varepsilon E^2 R}{6k^2} , \\
 W &= \frac{\varepsilon E^2}{8\pi} \int_V (\bar{n}_{10})^2 dV = \frac{\varepsilon E^2 R}{6k^2} .
 \end{aligned} \tag{26}$$

$$E^2 = \frac{6k^2}{\varepsilon R} \hbar \omega . \tag{27}$$

Плотность состояний /3/:

$$\rho_E = \frac{R}{2\pi \hbar c} \tag{28}$$

Отношение вероятности излучения в плазмон к вероятности излучения в пустое пространство

Теперь составим отношение вероятности излучения в плазмон к вероятности излучения в пустое пространство. Атом находится в щели. Это отношение равно:

$$F = \frac{\frac{16h}{11.864} \frac{\kappa_1^2}{\gamma_1^2} \hbar \omega \frac{Q}{\hbar \omega}}{\frac{6k_0^2}{\varepsilon_2 R} \frac{\hbar \omega}{2\pi \hbar c} \frac{R}{2\pi \hbar c}} \left(\varepsilon_1 \frac{\gamma_1^2}{\kappa_1} \right)^2 = \frac{16h}{11.864} \frac{\kappa_1^2}{\gamma_1^2} \frac{Q}{\hbar \omega} \left(\varepsilon_1 \frac{\gamma_1^2}{\kappa_1} \right)^2 \approx \frac{4}{3} \frac{h\gamma_1^2}{k_0^3} \varepsilon_1^2 Q \tag{29}$$

$$h\gamma_1^2 \approx h^3, \quad Q = 70, \quad \varepsilon_1^2 = 10^2, \quad h^3 / k_0^3 = (32.8)^3 = 3 \cdot 10^4$$

$$\frac{4}{3} \frac{h\gamma_1^2}{k_0^3} \varepsilon_1^2 Q \approx \frac{4}{3} 3 \cdot 10^4 \cdot 70 \cdot 10^2 \approx 3 \cdot 10^8 . \tag{30}$$

Полученное значение отношения чрезвычайно велико. Это означает, что задачу следует решать не прибегая к методу теории возмущений.

1. В.С.Зуев, Г.Я.Зуева, А.В.Францессон. Оптика и спектроскопия, т.95, 394-402 (2003)
2. J.A.Stratton. Electromagnetic Theory. McGRAW-HILL Book Co., Inc, New York and London, 1941
3. В.С.Зуев, А.В.Францессон. Оптика и спектроскопия, т.93, 117-127 (2002)