

Влияние димера наночастиц на ширину линии запрещенных E2-переходов

Д.В.Гузатов, В.В.Климов

В рамках классической электродинамики получены и исследованы аналитические выражения для радиационной ширины линии запрещенных E2-переходов в атоме, расположенном вблизи димера сферических частиц. Показано, что состав вещества частиц, их расположение и размер оказывают существенное влияние на ширину линии E2-перехода в атоме. Выявлено, что в зазоре между металлическими сферическими наночастицами ширина линии E2-переходов в атоме может принимать существенно большие значения, чем в случае атома вблизи одной металлической наночастицы.

Ключевые слова: ширина линии, запрещенный E2-переход, димер сферических частиц.

1. Введение

Известно, что вблизи материальных тел скорость спонтанного распада атомов и молекул и соответственно радиационная ширина линии излучения могут как увеличиваться, так и уменьшаться (эффект Перселла) [1]. Изменение ширины линии, как правило, обусловлено электрическими дипольными переходами [2]. Однако атомы и молекулы могут являться источниками магнитного дипольного, электрического квадрупольного и других типов мультипольных излучений, и вероятности этих переходов также существенно изменяются в присутствии наночастиц [3–9]. В общем случае вероятность спонтанного излучения сильно уменьшается при увеличении порядка мультипольности. Например, отношение интенсивностей квадрупольного и дипольного излучений в вакууме составляет $(a_0/\lambda)^2 \sim 10^{-6} - 10^{-8}$, где a_0 – линейный размер излучающей системы зарядов, а λ – длина волны излучения [10]. Поскольку это отношение – малая величина, исследование квадрупольных переходов (запрещенных E2-переходов) сильно затруднено [11–13]. Тем не менее квадрупольные переходы являются важным инструментом в спектроскопии сверхвысокого разрешения (см., напр., [14]).

Более того, если атом расположен вблизи тела, создающего большую неоднородность электрического поля, то ширина линии запрещенных E2-переходов в атоме может увеличиться из-за большого градиента поля [15, 16]. Отметим, что в лазерных пучках также можно создать условия для усиления эффектов взаимодействия с квадруполем [17–19]. На основе этих эффектов сейчас разрабатываются подходы с использованием наноструктуриро-

ванных материалов, позволяющие существенно улучшить спектроскопию квадрупольных переходов [20, 21].

К настоящему времени теоретически рассмотрено изменение ширины линии запрещенных E2-переходов в атоме, расположенном вблизи сферической частицы из диэлектрика (металла) [3–5, 9], вблизи идеально проводящего цилиндра [6], вблизи плоской границы раздела сред вакуум–диэлектрик (металл) и в плоском зазоре между двумя диэлектрическими (металлическими) средами [7], вблизи структуры в виде металлических нанополосок на диэлектрической подложке [22], а также вблизи двумерной бесконечной периодической решетки из металлических наносфер [23].

Гораздо более интересную геометрию имеет димер наночастиц, поскольку он является наноантенной, с помощью которой можно эффективно управлять как излучением, так и детектированием поля. Впервые эта геометрия была рассмотрена в [24] на примере двух наностержней конечной длины и квадратного сечения. Для данной геометрии не существует аналитического решения, и поэтому авторы [24] ограничились численным исследованием некоторых частных случаев. Это, конечно, не позволяет установить основные физические закономерности и их зависимости от параметров задачи. Для установления основных физических закономерностей крайне важно иметь аналитическое решение для наноантенн, состоящих из наночастиц более простой формы.

Целью настоящей работы является построение аналитического описания влияния димера одинаковых сферических частиц на радиационную ширину линии запрещенных E2-переходов в атоме в рамках классической электродинамики. Все аналитические результаты в работе будут получены для произвольных размеров частиц и расстояний между ними, произвольного состава вещества частиц и произвольных квадрупольных моментов атома.

Статья имеет следующую структуру. В разд.2 рассмотрено электромагнитное поле электрического квадрупольного источника (атома) в присутствии димера сферических частиц. В разд.3 получено выражение для ширины линии запрещенных E2-переходов в атоме, расположенном вблизи димера. В разд.4 приведены графические

Д.В.Гузатов. Гродненский государственный университет им. Янки Купалы, Белоруссия, 230023 Гродно, ул. Ожешко, 22; e-mail: dm_guzatov@mail.ru

В.В.Климов. Физический институт имени П.Н.Лебедева РАН, Россия, 119991 Москва, Ленинский просп., 53; Всероссийский научно-исследовательский институт автоматики им. Н.Л.Духова, Россия, 127055 Москва, ул. Сущевская, 22; Национальный исследовательский ядерный университет «МИФИ», Россия, 115409 Москва, Каширское ш., 31; e-mail: vklim@sci.lebedev.ru

иллюстрации полученных результатов и их обсуждение, а в разд.5 (Заключение) – основные результаты работы.

2. Электромагнитное поле электрического квадрупольного источника (атома) в присутствии димера сферических частиц

Для расчета ширины линии запрещенного E2-перехода прежде всего надо найти поле излучения, которое возникает при таком переходе. С этой целью запрещенный переход будет моделироваться электрическим квадрупольным источником. Для нахождения поля излучения, возникающего вблизи димера сферических частиц, мы воспользуемся методом Т-матрицы. Этот метод часто применяется для описания рассеяния электромагнитных волн кластерами сферических частиц. Он является точным и базируется на теории Ми для каждой частицы и теореме сложения для векторных сферических гармоник [25–30]. Первоначально метод был разработан Ватерманом [31] и в дальнейшем был значительно улучшен в работах [32–36]. Библиография, посвященная методу Т-матрицы, имеется в [37].

В случае димера сферических частиц метод Т-матрицы сводится к введению двух локальных систем координат, связанных с каждой из частиц. Для определенности будем считать, что начала локальных декартовых систем координат расположены в центрах частиц; системы имеют параллельные и одинаково направленные оси и общую ось z (рис. 1). Координаты и все другие величины, относящиеся к s -й ($s = 1, 2$) частице, будем выделять дополнительным индексом 1 или 2. В дальнейшем рассмотрим димер одинаковых сферических частиц с радиусами a , изготовленных из материала, определяемого диэлектрической и магнитной проницаемостями ε и μ соответственно. Димер расположен в среде с единичными значениями диэлектрической и магнитной проницаемостей. Случай димера из различных сферических частиц может быть рассмотрен аналогично.

Для решения задачи об излучении электрического квадрупольного источника вблизи димера надо записать общие выражения для полей вне частиц с учетом квадрупольного, а также общие выражения для полей внутри частиц и затем с помощью граничных условий на поверхности частиц найти неизвестные коэффициенты разложений.

Пользуясь представлением поля квадрупольного источника в сферических координатах [9], запишем для на-

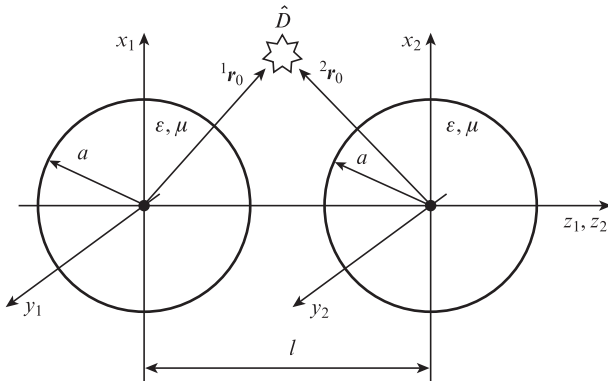


Рис. 1. Геометрия задачи об электрическом квадрупольном источнике (атоме), расположенном вблизи димера одинаковых сферических частиц.

пряженности электрического и магнитного полей источника в локальных сферических координатах, связанных с s -й частицей, следующие выражения (множитель $\exp(-i\omega t)$, характеризующий зависимость полей от времени, здесь и далее опущен):

$${}^s E_0 = \begin{cases} \sum_{n=1}^{\infty} \sum_{m=-n}^n [{}^s A_{mn}^{(0)} {}^s N \psi_{mn} + {}^s B_{mn}^{(0)} {}^s M \psi_{mn}], & |{}^s r| < |{}^s r_0|, \\ \sum_{n=1}^{\infty} \sum_{m=-n}^n [{}^s C_{mn}^{(0)} {}^s N \zeta_{mn} + {}^s D_{mn}^{(0)} {}^s M \zeta_{mn}], & |{}^s r| > |{}^s r_0|, \end{cases} \quad (1)$$

$${}^s H_0 = -\frac{i}{k_0} \text{rot } {}^s E_0,$$

где ${}^s N \psi_{mn}$, ${}^s M \psi_{mn}$, ${}^s N \zeta_{mn}$, ${}^s M \zeta_{mn}$ и ${}^s A_{mn}^{(0)}$, ${}^s B_{mn}^{(0)}$, ${}^s C_{mn}^{(0)}$, ${}^s D_{mn}^{(0)}$ – векторные сферические гармоники и коэффициенты разложения [9] соответственно, записанные в s -й локальной системе координат; ${}^s r$ и ${}^s r_0$ – радиусы-векторы точек наблюдения и расположения квадрупольного источника соответственно; $k_0 = \omega/c$ – волновое число; ω – частота; c – скорость света (в вакууме). Выражения для коэффициентов из (1) можно записать следующим образом [9]:

$$\begin{cases} {}^s A_{mn}^{(0)} \\ {}^s C_{mn}^{(0)} \end{cases} = ik_0^2 \frac{2n+1}{6n(n+1)} \times \sum_{\alpha, \beta = x, y, z} D_{\alpha\beta} (3\nabla'_\alpha - {}^s \hat{K}'_\alpha) \nabla'_\beta \left\{ \begin{matrix} b_{mn}^<(s r', s \theta', s \varphi') \\ b_{mn}^>(s r', s \theta', s \varphi') \end{matrix} \right\} \Big|_{s r' = s r_0}, \quad (2)$$

$$\begin{cases} {}^s B_{mn}^{(0)} \\ {}^s D_{mn}^{(0)} \end{cases} = k_0^3 \frac{2n+1}{6n(n+1)} \times \sum_{\alpha, \beta = x, y, z} D_{\alpha\beta} {}^s \hat{L}'_\alpha \nabla'_\beta \left\{ \begin{matrix} b_{mn}^<(s r', s \theta', s \varphi') \\ b_{mn}^>(s r', s \theta', s \varphi') \end{matrix} \right\} \Big|_{s r' = s r_0},$$

где

$$\begin{cases} b_{mn}^<(s r', s \theta', s \varphi') \\ b_{mn}^>(s r', s \theta', s \varphi') \end{cases} = \frac{(n-m)!}{(n+m)!} \frac{1}{k_0 s r'} \times \begin{cases} \zeta_n(k_0 s r') \\ \psi_n(k_0 s r') \end{cases} P_n^m(\cos s \theta') \exp(-im s \varphi'); \quad (3)$$

$D_{\alpha\beta}$ – компоненты матричного элемента квадрупольного момента при E2-переходе; ∇'_α – декартова компонента оператора градиента ∇' по координатам точки, задаваемой радиусом-вектором ${}^s r'$; ${}^s \hat{L}'_\alpha$ и ${}^s \hat{K}'_\alpha$ – декартовы компоненты операторов ${}^s \hat{L}' = -i({}^s r' \times \nabla')$ и ${}^s \hat{K}' = -i({}^s \hat{L}' \times \nabla')$ соответственно; $0 \leq s r' < \infty$, $0 \leq s \theta' \leq \pi$ и $0 \leq s \varphi' < 2\pi$ – сферические координаты точки, задаваемой радиусом-вектором ${}^s r'$; $P_n^m(x)$ – присоединенная функция Лежандра [38]; $\psi_n(x)$ и $\zeta_n(x)$ – функции Риккати–Бесселя [38], связанные с функциями Бесселя и Ханкеля соотношениями $\psi_n(x) = (\pi x/2)^{1/2} J_{n+1/2}(x)$ и $\zeta_n(x) = (\pi x/2)^{1/2} H_{n+1/2}^{(1)}(x)$. Отметим, что при записи (2), а также везде далее учтено, что компоненты тензора электрического квадрупольного момента, а также компоненты оператора градиента не меняются при переходе из одной локальной декартовой системы координат в другую, поскольку оси рассматриваемых локальных систем параллельны и одинаково направлены (рис. 1). Детали нахождения выражений (2) имеются в [9].

Напряженности электрического и магнитного полей, индуцированных вне димера, т.е. напряженности отраженных полей, можно представить в виде суммы парци-

альных напряженностей полей, отраженных от каждой из частиц и записанных в локальных координатах [39]:

$$\mathbf{E}_1 = \sum_{s=1}^2 {}^s\mathbf{E}_1, \quad \mathbf{H}_1 = \sum_{s=1}^2 {}^s\mathbf{H}_1, \tag{4}$$

где

$${}^s\mathbf{E}_1 = \sum_{n=1}^{\infty} \sum_{m=-n}^n [{}^sC_{mn}^{(1)} {}^s\mathbf{N}\zeta_{mn} + {}^sD_{mn}^{(1)} {}^s\mathbf{M}\zeta_{mn}]; \tag{5}$$

$${}^s\mathbf{H}_1 = -\frac{i}{k_0} \text{rot } {}^s\mathbf{E}_1;$$

коэффициенты ${}^sC_{mn}^{(1)}$ и ${}^sD_{mn}^{(1)}$ находим с помощью граничных условий. Напряженности полного поля вне частиц определяются, таким образом, суммой выражений (1) и (4).

Выражения для напряженностей электрического и магнитного полей, индуцированных внутри s -й частицы димера, т. е. для напряженностей прошедших полей, можно записать в виде

$${}^s\mathbf{E}_2 = \sum_{n=1}^{\infty} \sum_{m=-n}^n [{}^sA_{mn}^{(2)} {}^s\mathbf{N}\psi_{mn}^p + {}^sB_{mn}^{(2)} {}^s\mathbf{M}\psi_{mn}^p], \tag{6}$$

$${}^s\mathbf{H}_2 = -\frac{i}{kZ} \text{rot } {}^s\mathbf{E}_2,$$

где $k = k_0\sqrt{\varepsilon\mu}$; $Z = \sqrt{\mu/\varepsilon}$ – импеданс; ${}^s\mathbf{M}\psi_{mn}^p$ и ${}^s\mathbf{N}\psi_{mn}^p$ – векторные сферические гармоники [9], записанные в s -й локальной системе координат; ${}^sA_{mn}^{(2)}$ и ${}^sB_{mn}^{(2)}$ найдем с помощью граничных условий.

Для определения неизвестных коэффициентов в разложениях (5) и (6) надо воспользоваться граничными условиями непрерывности тангенциальных компонент напряженностей электрического и магнитного полей на поверхностях сфер [40]. При этом необходимо использовать теорему сложения векторных сферических гармоник (см., напр., [41]), которая позволяет векторные гармоники, описывающие поля вне димера и записанные в одних локальных координатах (например, для $s = 2$), представить в виде разложений по гармоникам, записанным в других локальных координатах ($s = 1$). Подставляя данные разложения в (5), получаем выражения для напряженностей ${}^2\mathbf{E}_1$ и ${}^2\mathbf{H}_1$ ($s = 2$) в виде рядов по векторным сферическим гармоникам в координатах первой сферы ($s = 1$). Найденные таким образом выражения складываются с выражениями для напряженностей ${}^1\mathbf{E}_1$ и ${}^1\mathbf{H}_1$ ($s = 1$) (см. (4)) и уже могут быть использованы для согласования полей на поверхности первой частицы. Аналогичные действия проводятся при использовании граничных условий на поверхности второй частицы.

Поскольку рассматриваемый атом находится вне сферических частиц, то для нахождения радиационной ширины линии, которая выражается через поток энергии на бесконечности, явные выражения для коэффициентов, входящих в выражения для полей внутри сфер, далее нам не понадобятся. Для коэффициентов ${}^sC_{mn}^{(1)}$ и ${}^sD_{mn}^{(1)}$, которые описывают отраженное поле можно получить следующие уравнения:

$${}^1C_{mn}^{(1)} + \alpha_n \sum_{q=|m|}^{\infty} V_{mnq} {}^2C_{mq}^{(1)} + \alpha_n \sum_{q=|m|}^{\infty} W_{mnq} {}^2D_{mq}^{(1)} = -\alpha_n {}^1A_{mn}^{(0)},$$

$${}^1D_{mn}^{(1)} + \beta_n \sum_{q=|m|}^{\infty} V_{mnq} {}^2D_{mq}^{(1)} + \beta_n \sum_{q=|m|}^{\infty} W_{mnq} {}^2C_{mq}^{(1)} = -\beta_n {}^1B_{mn}^{(0)},$$

$${}^2C_{mn}^{(1)} + \alpha_n \sum_{q=|m|}^{\infty} (-1)^{q+n} V_{mnq} {}^1C_{mq}^{(1)} - \alpha_n \sum_{q=|m|}^{\infty} (-1)^{q+n} W_{mnq} {}^1D_{mq}^{(1)} = -\alpha_n {}^2A_{mn}^{(0)}, \tag{7}$$

$${}^2D_{mn}^{(1)} + \beta_n \sum_{q=|m|}^{\infty} (-1)^{q+n} V_{mnq} {}^1D_{mq}^{(1)} - \beta_n \sum_{q=|m|}^{\infty} (-1)^{q+n} W_{mnq} {}^1C_{mq}^{(1)} = -\beta_n {}^2B_{mn}^{(0)},$$

где нижний предел суммирования по q следует полагать равным 1, если $m = 0$, и равным $|m|$, если $m \neq 0$; функции V_{mnq} и W_{mnq} даны в [41]; коэффициенты рассеяния α_n и β_n имеют вид

$$\alpha_n = \frac{\psi_n(ka)\psi_n'(k_0a) - Z\psi_n'(ka)\psi_n(k_0a)}{\psi_n(ka)\zeta_n'(k_0a) - Z\psi_n'(ka)\zeta_n(k_0a)}, \tag{8}$$

$$\beta_n = \frac{Z\psi_n(ka)\psi_n'(k_0a) - \psi_n'(ka)\psi_n(k_0a)}{Z\psi_n(ka)\zeta_n'(k_0a) - \psi_n'(ka)\zeta_n(k_0a)},$$

a – радиус частицы; штрих у функции обозначает ее производную. Если частицы димера расположены на большом расстоянии одна от другой, в (7) можно положить $V_{mnq} \approx 0$ и $W_{mnq} \approx 0$ [41], что приводит к соотношениям

$${}^sC_{mn}^{(1)} = -\alpha_n {}^sA_{mn}^{(0)}, \quad {}^sD_{mn}^{(1)} = -\beta_n {}^sB_{mn}^{(0)}, \tag{9}$$

которые выражают решение для поля, рассеянного на s -й сферической частице [9] и записанного в s -й локальной системе координат. Это подтверждает корректность уравнений (7).

Как видно из (7), структура полученных уравнений такова, что индекс n в них меняется, в то время как индекс m может быть зафиксирован. При численном решении (7) используются укороченные уравнения с $n \leq n_{\max}$. При этом чем больше n_{\max} , тем точнее получатся результаты для коэффициентов ${}^sC_{mn}^{(1)}$ и ${}^sD_{mn}^{(1)}$, что обусловлено их стремлением к нулю при $n \rightarrow \infty$ [42]. Следует также принимать во внимание взаимную конфигурацию сферических частиц: чем ближе они расположены друг к другу, тем большее n_{\max} требуется для достижения заданной точности [42].

3. Ширина линии E2-переходов в атоме, расположенном вблизи димера сферических частиц

Относительную радиационную ширину линии запрещенных E2-переходов в атоме, расположенном вблизи димера сферических частиц, в рамках классической электродинамики можно вычислить как отношение полной мощности излучения P_r системы, состоящей из квадрупольного источника и димера, к мощности излучения источника в отсутствие димера P_0 . Мощность P_0 определяется известным выражением [43]:

$$P_0 = \frac{ck_0^6}{360} \sum_{\alpha,\beta=x,y,z} |D_{\alpha\beta}|^2. \tag{10}$$

Для нахождения P_r используется формула [40]

$$P_r = \frac{c}{8\pi} \int_S dS \operatorname{Re} \{ [(\mathbf{E}_0 + \mathbf{E}_1), (\mathbf{H}_0^* + \mathbf{H}_1^*)] \mathbf{n} \}, \quad (11)$$

где интегрирование проводится по замкнутой поверхности S , охватывающей атом и димер; \mathbf{n} – внешняя нормаль к этой поверхности. В качестве поверхности S удобно взять сферу бесконечно большого радиуса с центром в какой-либо из локальных систем координат. Например, проводя вычисления в локальных координатах, связанных с первой частицей ($s = 1$), и нормируя на мощность излучения в свободном пространстве, найдем для относительной ширины линии E2-перехода в атоме γ_r следующее выражение:

$$\frac{\gamma_r}{\gamma_0} = \frac{P_r}{P_0} = \frac{c}{2k_0^2 P_0} \sum_{n=1}^{\infty} \sum_{m=-n}^n \frac{n(n+1)(n+m)!}{2n+1(n-m)!} \times [|{}^1C_{mn}^{(0)} + {}^1\tilde{C}_{mn}^{(1)}|^2 + |{}^1D_{mn}^{(0)} + {}^1\tilde{D}_{mn}^{(1)}|^2], \quad (12)$$

где $\gamma_0 = 4P_0/(\hbar\omega)$ – ширина линии E2-перехода в атоме в отсутствие димера [7];

$${}^1\tilde{C}_{mn}^{(1)} = {}^1C_{mn}^{(1)} + \sum_{q=|m|}^{\infty} [\tilde{V}_{mnq}^2 C_{mq}^{(1)} + \tilde{W}_{mnq}^2 D_{mq}^{(1)}]; \quad (13)$$

$${}^1\tilde{D}_{mn}^{(1)} = {}^1D_{mn}^{(1)} + \sum_{q=|m|}^{\infty} [\tilde{V}_{mnq}^2 D_{mq}^{(1)} + \tilde{W}_{mnq}^2 C_{mq}^{(1)}];$$

нижний предел суммирования по q следует полагать равным 1, если $m = 0$, и равным $|m|$, если $m \neq 0$; функции \tilde{V}_{mnq} и \tilde{W}_{mnq} даны в [40].

Следует отметить, что выражение (12) соответствует случаю двухуровневого атома. При этом $D_{\alpha\beta} = (D_{\alpha\beta})_{\tilde{\Gamma}}$ должно рассматриваться как электрический квадрупольный момент исследуемого перехода $i \rightarrow f$ с частотой $\omega_{\tilde{\Gamma}} \approx \omega$ [7]. Для учета возможности перехода в несколько состояний надо просуммировать соответствующие парциальные ширины линий по конечным состояниям.

Нужно также отметить, что использование классической и квантовой теорий для расчетов скоростей спонтанного распада электрического квадрупольного источника вблизи материального тела, строго говоря, приводит к разным результатам. В работе [7] была показана эквивалентность классического и квантового подходов лишь при описании полной скорости спонтанного распада квадруполя вблизи материального тела в случае слабого взаимодействия, когда спонтанный распад может быть описан скоростью распада и одной частотой перехода. Если же взаимодействие между атомом и телом является сильным, возникают сложные эффекты, для описания которых требуется привлечь квантовую электродинамику [44, 45]. Кроме того, нет точной эквивалентности квантового и классического подходов при расчетах безрадиационной скорости спонтанного распада атома вблизи поглощающего тела. Ситуация осложняется еще и тем, что в рамках квантовой теории для этого надо использовать нестандартную схему квантования [46–49].

В настоящей работе рассматривается лишь радиационная скорость спонтанного распада (т.е. радиационная ширина линии), т.к. именно эта величина измеряется в экспериментах. Безрадиационный канал спонтанного распада, т.е. канал, связанный с джоулевыми потерями

в веществе сфер, будет рассмотрен в отдельной публикации.

4. Анализ полученных результатов и графические иллюстрации

Ширина линии E2-перехода в атоме вблизи димера сферических частиц зависит от многих параметров и ее полное описание является весьма сложным. Ниже для наглядности будут приведены графические иллюстрации некоторых характерных режимов взаимодействия атома с димерами различного состава. При этом в настоящей работе мы ограничимся рассмотрением только наиболее интересного случая расположения атома в зазоре между частицами на общей оси z , проходящей через центры частиц (рис.1), т.к. в этом случае локальные поля максимальны. В данной геометрии выражения для коэффициентов ${}^sA_{mn}^{(0)}$, ${}^sB_{mn}^{(0)}$, ${}^sC_{mn}^{(0)}$ и ${}^sD_{mn}^{(0)}$ существенно упрощаются [9], поэтому отличными от нуля являются лишь коэффициенты ${}^sC_{mn}^{(1)}$ и ${}^sD_{mn}^{(1)}$ с $m = 0, \pm 1, \pm 2$.

Далее рассмотрим несколько частных случаев атома с заданным квадрупольным моментом. Следует отметить, что в эксперименте трудно создать ситуацию со строго заданной ориентацией квадрупольного момента. Однако рассмотрение атомов с усредненной ориентацией квадрупольного момента приводит к заметному ослаблению всех эффектов. Поэтому в дальнейшем будут рассмотрены атомы с фиксированными ориентациями моментов. При этом мы ограничимся случаями расположенного на оси z атома с радиально ориентированным квадрупольным моментом с $D_{xx} = D_{yy}$ и $D_{xy} = D_{xz} = D_{yz} = 0$ [4], а также атома с тангенциально ориентированным квадрупольным моментом с $D_{xx} = D_{zz}$ (или $D_{yy} = D_{zz}$) и $D_{xy} = D_{xz} = D_{yz} = 0$ [4]. Другие случаи с другими значениями квадрупольных моментов, в том числе с усредненными, могут быть рассмотрены с помощью найденных в работе общих выражений.

На рис.2 показаны зависимости относительной ширины линии запрещенного E2-перехода в атоме, расположенном в зазоре димера диэлектрических сфер вблизи поверхности первой сферы и вблизи поверхности одной диэлектрической сферы, от k_0a .

Из рис.2 видно, что при $k_0a \rightarrow 0$ ширина линии E2-перехода в атоме возрастает. Асимптотическое выражение для ширины линии в случае атома, расположенного на поверхности одной диэлектрической наносферы ($k_0a \ll 1$), может быть найдено и имеет для радиально (rad) и тангенциально (tan) ориентированных квадрупольных моментов атома следующий вид [4]:

$$\left(\frac{\gamma_r}{\gamma_0} \right)_{\text{rad}} \approx \frac{180}{(k_0a)^2} \left(\frac{\varepsilon - 1}{\varepsilon + 2} \right)^2, \quad \left(\frac{\gamma_r}{\gamma_0} \right)_{\text{tan}} \approx \frac{45}{(k_0a)^2} \left(\frac{\varepsilon - 1}{\varepsilon + 2} \right)^2. \quad (14)$$

Как следует из (14), при $k_0a \rightarrow 0$ ширины линий для атомов с радиально и тангенциально ориентированными квадрупольными моментами неограниченно возрастают. Асимптотические выражения для атомов с другими ориентациями квадрупольного момента имеются в [9]. Из рис.2 видно, что при близком расположении сфер димера зависимость (14) изменяется: при $k_0a \rightarrow 0$ скорость возрастания γ_r/γ_0 в случае атома в зазоре между двумя наносферами увеличивается по сравнению со случаем атома вблизи одной наносферы.

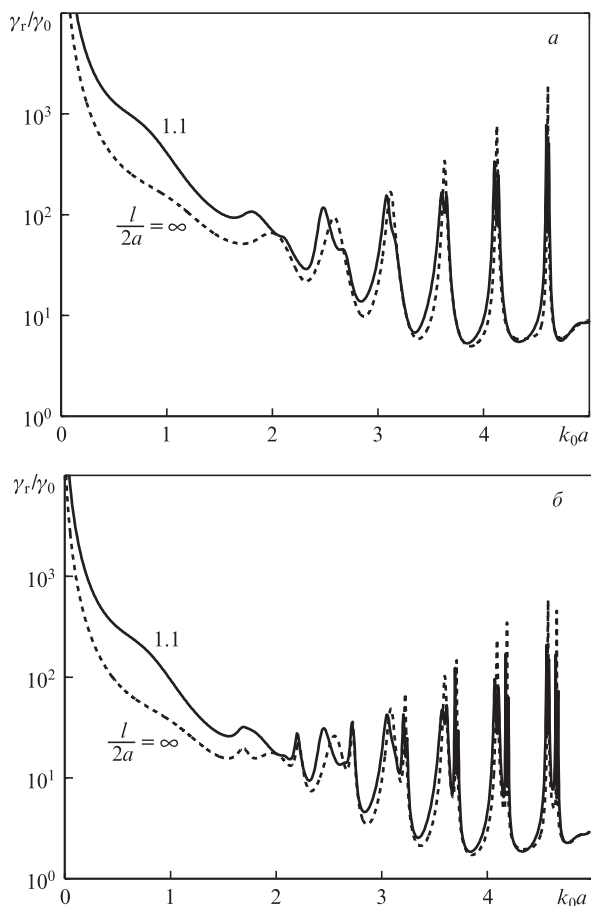


Рис.2. Относительная радиационная ширина линии запрещенного E2-перехода в атоме, имеющем радиальную (а) и тангенциальную (б) ориентации электрического квадрупольного момента и расположенном вблизи первой сферы димера ($^1r_0 = a$ и $^2r_0 = l - a$) на оси z , как функция k_0a при заданном $l/(2a)$. Диэлектрическая и магнитная проницаемости частиц димера $\epsilon = 6$ и $\mu = 1$. Случай одной сферы соответствует $l/(2a) = \infty$.

При увеличении k_0a зависимость относительной ширины линии запрещенного E2-перехода в атоме, расположенном в зазоре димера диэлектрических сфер, становится все более сложной. Из рис.2 видно, что возникает осциллирующая зависимость ширины линии от k_0a с большим числом максимумов, соответствующих тем или иным модам шепчущей галереи, которые возбуждаются атомом в димере. При этом близкое расположение второй сферы приводит к смещению и расщеплению максимумов, соответствующих одной частице, вследствие возбуждения большего числа мод в димере.

Из рис.2 следует, что существенное различие ширины линий запрещенных E2-переходов в атоме вблизи одной сферы и в зазоре димера двух сфер наблюдается в случае наносфер ($k_0a \ll 1$). Это различие еще больше увеличивается для наносфер из металла ($\epsilon < 0, \mu > 0$), поскольку в зазоре между близко расположенными металлическими наночастицами локальное поле возрастает.

На рис.3 показана относительная ширина линии запрещенного E2-перехода в атоме с радиально ориентированным электрическим квадрупольным моментом, расположенном в зазоре димера двух металлических наносфер и вблизи поверхности одной металлической наносферы, как функция диэлектрической проницаемости.

Из рис.3,а видно, что ширины линий для нанодимера и одной наносферы различны. Относительная радиаци-

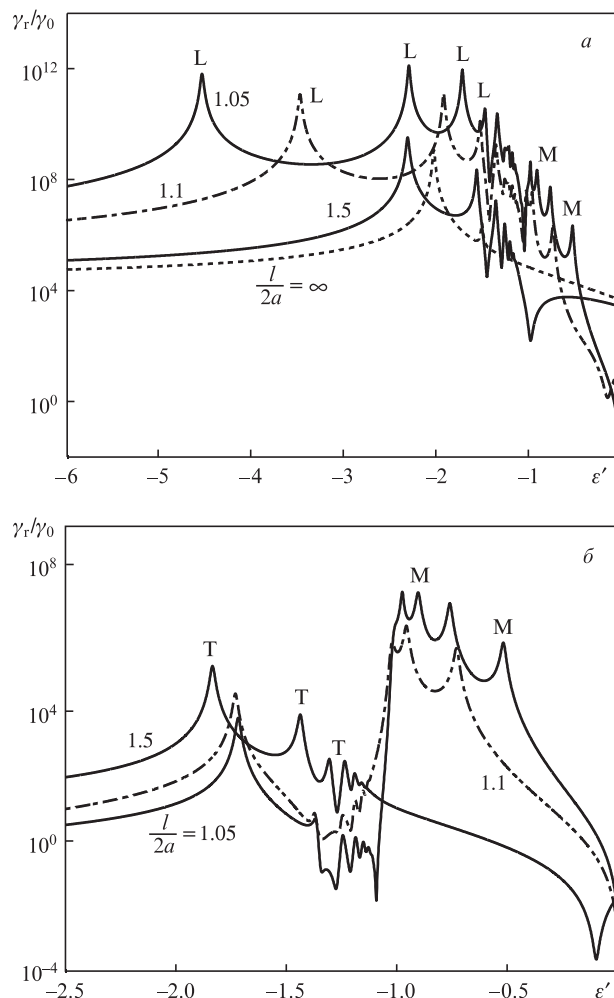


Рис.3. Относительная радиационная ширина линии запрещенного E2-перехода в атоме, имеющем радиально ориентированный электрический квадрупольный момент и расположенном на оси z в зазоре димера вблизи первой наносферы ($^1r_0 = a$ и $^2r_0 = l - a$) (а) и в центре зазора между наносферами ($^1r_0 = ^2r_0 = l/2$) (б), как функция действительной части диэлектрической проницаемости наносфер $\epsilon = \epsilon' + i0.01$ для $\mu = 1, k_0a = 0.1$ и при заданном $l/(2a)$. Случай одной наносферы с атомом, расположенным вблизи поверхности, соответствует $l/(2a) = \infty$. Буквы L, T и M обозначают максимумы, соответствующие возбуждению L-, T- и M-мод в димере наносфер [50, 51].

онная ширина линии E2-перехода в атоме, расположенном в зазоре между наносферами, может принимать существенно большие значения, чем в атоме вблизи одной наносферы. В случае димера на зависимости относительной ширины линии от диэлектрической проницаемости возникает большее число максимумов вследствие большего числа плазмонных мод, возбуждаемых в нанодимере, чем возбуждаемых в одной наночастице. При этом с уменьшением расстояния между наносферами число возбуждаемых мод растет. Для атома с радиально ориентированным квадрупольным моментом, расположенного в зазоре димера вблизи поверхности одной из наносфер (рис.3,а), возбуждаются L- и M-моды [50, 51], а для атома, находящегося в центре зазора (рис.3,б), возбуждаются T- и M-моды [50, 51].

Отметим, что поверхностный заряд в случае L- и M-мод сконцентрирован вблизи зазора между наночастицами [50, 52], поэтому такие моды эффективно возбуждаются локальным источником (атомом). Из рис.3,а сле-

дует, что при сближении наносфер относительная ширина линии E2-перехода в атоме для L- и M-мод возрастает. При разнесении наносфер M-моды исчезают быстрее, чем L-моды, т.к. они возникают лишь при $l/(2a) < 1.2$ [50, 51]. Отметим, что по своим свойствам M-моды являются «темными» модами.

Третий тип мод в димере – T-моды. Они имеют распределение заряда преимущественно вне области зазора между наночастицами [50, 52] и поэтому наиболее эффективно возбуждаются плоской электромагнитной волной. Из рис.3,б видно, что при сближении наносфер относительная ширина линии для T-мод уменьшается.

Следовательно, электрический квадрупольный источник может возбудить все типы плазмонных мод, возникающих в димере металлических наночастиц. Большое число плазмонных мод позволяет управлять спонтанным распадом атома, расположенного в зазоре димера, если изменять расстояние между наночастицами.

5. Заключение

Таким образом, в рамках классической электродинамики нами получены и исследованы аналитические выражения для радиационной ширины линии запрещенных E2-переходов в атоме, находящемся вблизи димера одинаковых сферических частиц произвольных материального состава, размеров и взаимного расположения. Исследованы особенности излучения атомов с различными значениями квадрупольного момента для димеров из диэлектрика и металла.

Показано, что в случае атома, находящегося в зазоре димера металлических сферических наночастиц, радиационная ширина линии запрещенных E2-переходов может принимать существенно большие значения, чем в случае квадрупольного источника вблизи одной металлической наночастицы. При этом также показано, что такой атом может возбуждать все типы плазмонных мод, которые существуют в димере металлических наночастиц.

Полученные результаты могут быть использованы для расчета ширины линии запрещенных E2-переходов в атомах, расположенных вблизи димера сферических частиц, и для интерпретации экспериментальных данных по взаимодействию наночастиц с атомами и молекулами, в том числе при проектировании нанолазеров и спазеров.

Авторы выражают благодарность РФФИ (гранты №14-02-00290 и 15-52-52006) за финансовую поддержку данной работы. В.В.Климов также выражает благодарность Фонду перспективных исследований (грант №7/004/2013-2018 от 23.12.2013) за финансовую поддержку настоящей работы.

1. Purcell E.M. *Phys. Rev.*, **69**, 681 (1946).
2. Бункин Ф.В., Ораевский А.Н. *Изв. вузов. Сер. Радиофизика*, **2**, 181 (1959).
3. Klimov V.V., Letokhov V.S. *Opt. Commun.*, **122**, 155 (1996).
4. Klimov V.V., Letokhov V.S. *Phys. Rev. A*, **54**, 4408 (1996).
5. Klimov V.V., Letokhov V.S. *Comments Mod. Phys.*, **2** (1), D15 (2000).
6. Klimov V.V., Ducloy M. *Phys. Rev. A*, **62**, 043818 (2000).
7. Klimov V.V., Ducloy M. *Phys. Rev. A*, **72**, 043809 (2005).
8. Crosse J.A., Scheel S. *Phys. Rev. A*, **79**, 062902 (2009).
9. Гузатов Д.В. *ЖЭТФ*, **149**, 137 (2016).

10. Собельман И.И. *Введение в теорию атомных спектров* (М.: Физматлит, 1963).
11. Dietrich D.D., Chandler G.A., Fortner R.J., Hailey C.J., Stewart R.E. *Phys. Rev. Lett.*, **54**, 1008 (1985).
12. Gauthier J.-C., Geindre J.-P., Monier P., Luc-Koenig E., Wyart J.-F. *J. Phys. B: At. Mol. Phys.*, **19**, L385 (1986).
13. Sekatskii S.K., Shubeita G.T., Dietler G. *Opt. Commun.*, **188**, 41 (2001).
14. Chan E.A., Alijund S.A., Zheludev N., Wilkowski D., Ducloy M. *Opt. Lett.*, **41**, 2005 (2016).
15. Tojo S., Hasuo M., Fujimoto T. *Phys. Rev. Lett.*, **92**, 053001 (2004).
16. Tojo S., Hasuo M. *Phys. Rev. A*, **71**, 012508 (2005).
17. Klimov V.V., Bloch D., Ducloy M., Rios Leite J.R. *Opt. Express*, **17**, 9718 (2009).
18. Klimov V.V., Bloch D., Ducloy M., Rios Leite J.R. *Phys. Rev. A*, **85**, 053834 (2012).
19. Lembessis V.E., Babiker M. *Phys. Rev. Lett.*, **110**, 083002 (2013).
20. Chan E.A., Alijund S.A., Adamo G., Ducloy M., Wilkowski D., Zheludev N. *Proc. 2015 Eur. Conf. on Lasers and Electro-Optics – Eur. Quantum Electronics Conf.* (Munich, Optical Society of America, 2015, paper EG_2_1).
21. Alijund S.A., Chan E.A., Adamo G., Ducloy M., Wilkowski D., Zheludev N. *Nano Lett.*, **16**, 3137 (2016).
22. Deguchi K., Okuda M., Iwamae A., Nakamura H., Sawada K., Hasuo M. *J. Phys. Soc. Jpn.*, **78**, 024301 (2009).
23. Yannopoulos V., Paspalakis E. *J. Mod. Opt.*, **62**, 1435 (2015).
24. Kern A.M., Martin O.J.F. *Phys. Rev. A*, **85**, 022501 (2012).
25. Quinten M., Kreibig U. *Appl. Opt.*, **32**, 6173 (1993).
26. Borghese F., Denti P., Toscano G., Sindoni O.I. *Appl. Opt.*, **18**, 116 (1979).
27. Bruning J.H., Lo Y.T. *IEEE Trans. Antennas Propag.*, **19**, 378 (1971).
28. Fuller K.A., Kattawar G.W. *Opt. Lett.*, **13**, 90 (1988).
29. Hamid A.K. *J. Electromagn. Waves Appl.*, **10**, 723 (1996).
30. Mackowski D.W. *J. Opt. Soc. Am. A*, **11**, 2851 (1994).
31. Waterman P.C. *Phys. Rev. D*, **3**, 825 (1971).
32. Mishchenko M.I., Travis L.D. *Opt. Commun.*, **109**, 16 (1994).
33. Mishchenko M.I., Mackowski D.W., Travis L.D. *Appl. Opt.*, **34**, 4589 (1995).
34. Mishchenko M.I., Travis L.D., Mackowski D.W. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, **55**, 535 (1996).
35. Mackowski D.W., Mishchenko M.I. *J. Opt. Soc. Am. A*, **13**, 2266 (1996).
36. Mackowski D.W. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, **70**, 441 (2001).
37. Mishchenko M.I., Travis L.D., Laci A.A. *Scattering, Absorption, and Emission of Light by Small Particles* (New York, Goddard Institute for Space Studies, 2004).
38. *Справочник по специальным функциям с формулами, графиками и математическими таблицами*. Под ред. М.Абрамовитца (М.: Наука, 1979).
39. Fuller K.A. *J. Opt. Soc. Am. A*, **11**, 3251 (1994).
40. Стрэттон Дж.А. *Теория электромагнетизма* (М.–Л.: ГИТТЛ, 1948).
41. Гузатов Д.В., Климов В.В. *Квантовая электроника*, **45**, 250 (2015).
42. Иванов Е.А. *Дифракция электромагнитных волн на двух телах* (Минск: Наука и техника, 1968).
43. Джексон Дж. *Классическая электродинамика* (М.: Мир, 1966).
44. Klimov V.V., Ducloy M., Letokhov V.S. *Phys. Rev. A*, **59**, 2996 (1999).
45. Klimov V.V., Letokhov V.S., Ducloy M. *Laser Phys.*, **17**, 912 (2007).
46. Scheel S., Knoll L., Welsch D.-G. *Phys. Rev. A*, **58**, 700 (1998).
47. Scheel S., Knoll L., Welsch D.-G. *Phys. Rev. A*, **60**, 4094 (1999).
48. Dung H.T., Knoll L., Welsch D.-G. *Phys. Rev. A*, **62**, 053804 (2000).
49. Dung H.T., Knoll L., Welsch D.-G. *Phys. Rev. A*, **64**, 013804 (2001).
50. Klimov V.V., Guzатов D.V. *Phys. Rev. B*, **75**, 024303 (2007).
51. Климов В.В., Гузатов Д.В. *Квантовая электроника*, **37**, 209 (2007).
52. Guzатов D.V., Klimov V.V. *New J. Phys.*, **13**, 053034 (2011).