

Спонтанное излучение атома, расположенного вблизи апертуры сканирующего микроскопа

В. В. Климов¹⁾

Физический институт им. П. Н. Лебедева РАН, 119991 Москва, Россия

Поступила в редакцию 7 августа 2003 г.

В рамках квазистатического приближения найдены аналитические выражения для скоростей спонтанного распада атома, расположенного вблизи круглой апертуры сканирующего микроскопа. Полученные результаты показывают не только существенное ускорение скорости спонтанных распадов вблизи кромки отверстия, но и существенное замедление распада атома вблизи центра апертуры в том случае, когда вектор дипольного момента перехода лежит в плоскости отверстия.

PACS: 32.50.+d, 42.50.Pg, 68.37.Uv

В настоящее время с помощью оптических сканирующих микроскопов активно исследуются не только объекты нанометровых размеров, но и отдельные молекулы [1–4]. В самое последнее время были проведены экспериментальные исследования, направленные на изучения влияния ориентации дипольного момента молекул на образ молекулы, получаемой с помощью сканирующего микроскопа [5–8]. Геометрия такого рода экспериментов показана на рис.1. Ин-

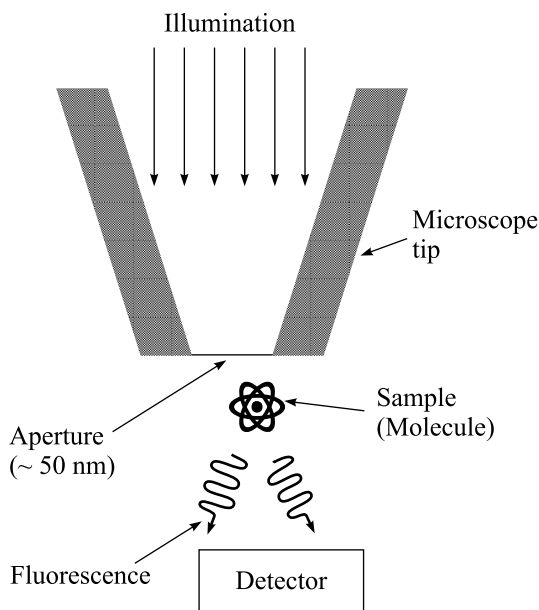


Рис.1. Принцип работы апертурного сканирующего микроскопа

терпретация результатов, полученных в этих работах, является довольно затруднительной, так как те-

ория излучения и поглощения света молекулой в присутствии иглы сканирующего микроскопа является весьма сложной. В настоящей работе мы рассмотрим проблему скорости спонтанного излучения атома вблизи апертуры сканирующего микроскопа при произвольном положении атома и произвольной ориентации его дипольного момента. При этом в качестве модели апертуры мы будем использовать круглое отверстие радиусом $a \ll \lambda$ (λ – длина волны излучения) в идеально проводящем экране (рис.2).

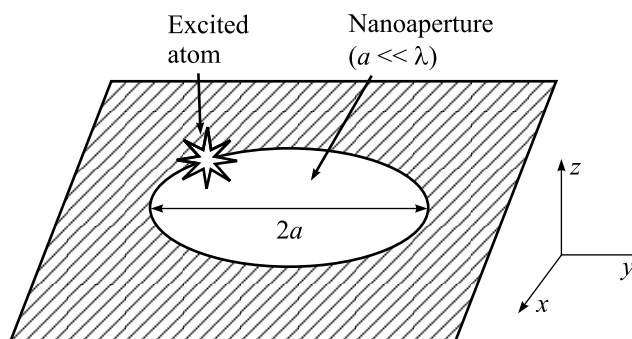


Рис.2. Геометрия задачи о спонтанном излучении атома вблизи апертуры

В случае слабого взаимодействия атома или молекулы с любым нанобъектом, скорость спонтанных переходов γ может быть представлена выражением [9, 10]:

$$\frac{\gamma}{\gamma_0} = 1 + \frac{3}{2} \text{Im} \frac{\mathbf{d}_0 \cdot \mathbf{E}^R(\mathbf{r}', \mathbf{r}', \omega_0)}{d_0^2 k^3}, \quad (1)$$

где $\mathbf{E}^R(\mathbf{r}', \mathbf{r}', \omega_0)$ описывает отраженное поле диполя \mathbf{d}_0 вблизи нанотела на частоте излучения атома ω_0 в точке расположения атома \mathbf{r}' и может быть найдено из решения уравнений Максвелла с дипольным источником, γ_0 – скорость распада в вакууме, $k = \omega_0/c$.

¹⁾e-mail: vklim@sci.lebedev.ru

Нахождение отраженного поля вблизи отверстия в случае падения плоской волны является классической задачей дифракции, относительно простое решение которой может быть найдено в случае малого по сравнению с длиной волны отверстия [11, 12]. Даже в этом случае структура поля вблизи отверстия оказывается весьма интересной и может быть использована для управления движением атомов с нанометровой точностью [13].

Для точечного источника – а дипольный момент молекулы можно рассматривать как точечный дипольный источник – задача становится гораздо сложнее. Однако в случае наноотверстия, то есть отверстия, размер которого мал по сравнению с длиной волны излучения, можно показать, что скорость спонтанных распадов (1) может быть представлена в виде [10]

$$\left(\frac{\gamma}{\gamma_0}\right)^{\text{radiative}} = \frac{|\mathbf{d}_{\text{total}}|^2}{|\mathbf{d}_0|^2}, \quad (2)$$

где $\mathbf{d}_{\text{total}}$ – полный дипольный момент системы атом + нанотело. В этом случае задача сводится к нахождению полного дипольного момента системы в квазистатическом приближении.

Для нахождения полного дипольного момента системы атом + апертура следует решить квазистатическую задачу

$$\text{rot } \mathbf{E} = 0, \quad \text{div } \mathbf{D} = 4\pi\rho, \quad (3)$$

где плотность заряда диполя определяется обычным выражением:

$$\rho = (\mathbf{d}_0 \nabla') \delta^{(3)}(\mathbf{r} - \mathbf{r}') e^{-i\omega t}. \quad (4)$$

В (4) δ – функция Дирака и ∇' означает градиент по координате положения атома, \mathbf{r}' , \mathbf{d}_0 – дипольный момент перехода. В дальнейшем мы будем опускать зависимость полей от времени.

Вводя потенциал $\bar{\varphi}$

$$\mathbf{E} = -\nabla(\mathbf{d}_0 \nabla') \bar{\varphi}(\mathbf{r}, \mathbf{r}'), \quad (5)$$

мы получаем обычное уравнение Пуассона

$$-\nabla^2 \bar{\varphi} = 4\pi \delta^{(3)}(\mathbf{r} - \mathbf{r}'), \quad (6)$$

которое должно быть дополнено условием равенства нулю потенциала (или тангенциальной компоненты поля) на поверхности экрана.

Решение (6) удобно представить в виде

$$\bar{\varphi} = \varphi_0 + \delta\varphi, \quad (7)$$

где φ_0 – потенциал единичного заряда в пустом пространстве:

$$\varphi_0 = 1/|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|. \quad (8)$$

При решении квазистатической задачи (6) и (7) естественно ось симметрии системы (ось z) совместить с осью тороидальной системы координат (рис.2) [14]. Координатные поверхности этой системы ($0 \leq \eta \leq \infty$, $0 \leq \xi \leq 2\pi$, $0 \leq \psi \leq 2\pi$) состоят из тороидов ($\eta = \text{const}$), сфер ($\xi = \text{const}$) и плоскостей

$$y = x \tan \psi. \quad (9)$$

Декартовы координаты связаны с тороидальными следующими соотношениями:

$$\begin{aligned} x &= a \frac{\text{sh } \eta}{\text{ch } \eta - \cos \xi} \cos \psi, \\ y &= a \frac{\text{sh } \eta}{\text{ch } \eta - \sin \xi} \sin \psi, \\ z &= a \frac{\sin \xi}{\text{ch } \eta - \cos \xi}. \end{aligned} \quad (10)$$

Коэффициенты Ламе тороидальной системы координат имеют вид

$$h_\xi = h_\eta = \frac{a}{\text{ch } \eta - \cos \xi}; \quad h_\psi = \frac{a \text{sh } \eta}{\text{ch } \eta - \cos \xi}. \quad (11)$$

Функция Грина свободного пространства (8) может быть представлена в виде

$$\varphi_0 = \frac{1}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} = \frac{1}{a} \sqrt{\frac{(\text{ch } \eta - \cos \xi)(\text{ch } \eta' - \cos \xi')}{2(\text{ch } \Omega - \cos(\xi - \xi'))}}, \quad (12)$$

$$\text{ch } \Omega = \text{ch } \eta \text{ch } \eta' - \text{sh } \eta \text{sh } \eta' \cos(\psi - \psi').$$

Выражение (12) может быть представлено в интегральном виде:

$$\begin{aligned} \varphi_0 &= \frac{1}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} = \frac{1}{2} \sqrt{(\text{ch } \eta - \cos \xi)(\text{ch } \eta' - \cos \xi')} I, \\ I &= \int_0^\infty d\tau P_{-1/2+i\tau}(\text{ch } \Omega) \frac{\text{ch}(\tau(\pi - |\xi - \xi'|))}{\text{ch}(\tau\pi)}. \end{aligned} \quad (13)$$

Решение для потенциала отраженного поля $\delta\varphi$ будем искать в виде

$$\begin{aligned} \delta\varphi &= \frac{1}{a} \sqrt{(\text{ch } \eta - \cos \xi)(\text{ch } \eta' - \cos \xi')} R, \\ R &= \int_0^\infty d\tau \frac{P_{-1/2+i\tau}(\text{ch } \Omega)}{\text{ch}(\tau\pi)} (A_1 e^{\tau\xi} + A_2 e^{-\tau\xi}). \end{aligned} \quad (14)$$

Находя коэффициенты A_1 , A_2 из условия равенства нулю потенциала на поверхности экрана ($\xi = 0, 2\pi$), для полного потенциала (7) получим выражение

$$\bar{\varphi}(\mathbf{r}, \mathbf{r}') = \frac{1}{a} \sqrt{(\text{ch } \eta - \cos \xi)(\text{ch } \eta' - \cos \xi')} (I + R), \quad (15)$$

$$I + R = \int_0^\infty d\tau \frac{P_{-1/2+i\tau}(\text{ch } \Omega)}{\text{ch}^2(\tau\pi)} \begin{cases} \text{sh } \tau(2\pi - \xi) \text{sh } \tau\xi', & \xi > \xi' \\ \text{sh } \tau(2\pi - \xi') \text{sh } \tau\xi, & \xi' > \xi. \end{cases}$$

Полученное интегральное представление решения справедливо для любых параметров.

Для вычисления интегралов в (15) используем интегральное представление для функции Лежандра

$$P_{-1/2+i\tau}(\text{ch } \Omega) = \frac{2}{\pi} \text{ch } \pi\tau \int_0^\infty \frac{ds \cos \tau s}{\sqrt{2(\text{ch } \Omega + \text{ch } s)}}, \quad (16)$$

в результате чего окончательное выражение для потенциала точечного заряда в присутствии отверстия в идеально проводящей плоскости принимает вид :

$$\begin{aligned} \bar{\varphi}(\mathbf{r} - \mathbf{r}') &= \frac{\sqrt{(\text{ch } \eta - \cos \xi)(\text{ch } \eta' - \cos \xi')}}{\pi a \sqrt{2}} \times \\ &\times \left[\frac{\frac{\pi}{2} + \arcsin \frac{\cos((\xi - \xi')/2)}{\text{ch}(\Omega/2)}}{\sqrt{\text{ch } \Omega - \cos(\xi - \xi')}} - \right. \\ &\left. - \frac{\frac{\pi}{2} + \arcsin \frac{\cos((\xi + \xi')/2)}{\text{ch}(\Omega/2)}}{\sqrt{\text{ch } \Omega - \cos(\xi + \xi')}} \right]. \quad (17) \end{aligned}$$

Знание потенциала в присутствии отверстия позволяет найти полный дипольный момент системы и затем, с помощью (2), выражения для скорости спонтанных переходов при любом положении и ориентации дипольного момента.

Для нахождения полного дипольного момента системы надо найти выражения для потенциала на больших расстояниях $R = \sqrt{x^2 + y^2 + z^2}$ от нанотверстия. Соответствующие асимптотики имеют вид

$$\bar{\varphi}(\mathbf{r}, \mathbf{r}') \approx \begin{cases} \frac{az}{\pi\sqrt{2}R^3} f^+(\xi', \eta'), & z > 0 \\ \frac{az}{\pi\sqrt{2}R^3} f^-(\xi', \eta'), & z < 0 \end{cases} \quad (18)$$

где

$$f^\pm(\xi', \eta') = \pm \frac{4 \sin(\xi'/2)}{\sqrt{\text{ch } \eta' - \cos \xi'}} + \frac{2\sqrt{2} \sin(\xi') (\pi/2 \pm \arcsin(\cos(\xi'/2)/\text{ch}(\eta'/2)))}{\text{ch } \eta' - \cos \xi'}. \quad (19)$$

Выражения (18) и (19) показывают, что как в верхней, так и в нижней полуплоскостях потенциал имеет дипольный характер, причем в первом приближении отличной от нуля оказывается только z -компонента дипольного момента. С помощью (18) и (19) легко

найти выражения для дипольных моментов, описывающих излучение в верхнее и нижнее полупространство соответственно:

$$\begin{aligned} d_{z,\text{tot}}^\pm &= \frac{a}{\pi\sqrt{2}} (\mathbf{d}_0 \nabla') f^\pm(\xi', \eta') = \\ &= \frac{a}{\pi\sqrt{2}} \left(\frac{d_{0,\xi'}}{h_{\xi'}} \frac{\partial}{\partial \xi'} + \frac{d_{0,\eta'}}{h_{\eta'}} \frac{\partial}{\partial \eta'} \right) f^\pm(\xi', \eta'). \quad (20) \end{aligned}$$

Для полной скорости спонтанных распадов соответственно получим:

$$\frac{\gamma}{\gamma_0} = \frac{1}{2} \left(\frac{d_{z,\text{tot}}^+{}^2}{d_0^2} + \frac{d_{z,\text{tot}}^-{}^2}{d_0^2} \right). \quad (21)$$

В выражении (21) первый член описывает излучение в верхнее полупространство, в то время как второй член описывает излучение в нижнее полупространство. Важной особенностью рассматриваемого приближения является то, что в случае φ -ориентации дипольного момента при любом положении атома спонтанное излучение существенно подавлено и описывается членами порядка $(ka)^2$ (магнитно-дипольное и квадрупольное излучение), то есть членами более высокого порядка малости по сравнению с (21). В дальнейшем мы будем опускать штрихи в координатах, описывающих положение атома.

Таким образом, спонтанное излучение атома, расположенного вблизи нанотверстия, может быть описано сравнительно простыми аналитическими выражениями (19)–(21).

В частных ситуациях выражения (19)–(21) становятся совсем простыми. Так, например, в случае атома, расположенного на оси системы $\rho = 0$, излучение возможно только для дипольного момента, ориентированного по оси z . При этом полные дипольные моменты, описывающие излучение в верхнее и нижнее полупространства, имеют вид

$$\frac{d_{\text{tot},z}^\pm}{d_0} = 1 \pm \left(\frac{2}{\pi} \arctan \left(\frac{z}{a} \right) + \frac{2az}{\pi(a^2 + z^2)} \right). \quad (22)$$

При $z = 0$ $d_{\text{tot},z}^+/d_0 = d_{\text{tot},z}^-/d_0 = 1$, то есть для атома в центре отверстия он излучает так, как он излучал бы в свободном пространстве. При $z \gg a$ $d_{\text{tot},z}^+/d_0 = 2$, $d_{\text{tot},z}^-/d_0 = 0$ и система излучает с удвоенным дипольным моментом в верхнее полупространство. Заметим, что предел $z \gg a$, конечно, обозначает только $\lambda \gg z \gg a$. При удалении атома на расстояния, сравнимые с длиной волны излучения, нанотверстие перестает влиять на излучение и следует использовать выражения для скорости спонтан-

ных распадов в присутствии плоскости без отверстия [10]:

$$\frac{\gamma}{\gamma_0} = \left(1 + 3 \left(\frac{\sin(2kz)}{(2kz)^3} - \frac{\cos(2kz)}{(2kz)^2} \right) \right), \quad \frac{z}{a} \gg 1. \quad (23)$$

На рис.3а показана полная скорость распадов, а также скорости распада в верхнее и нижнее полупространства в случае z -ориентированного диполя, расположенного на оси.

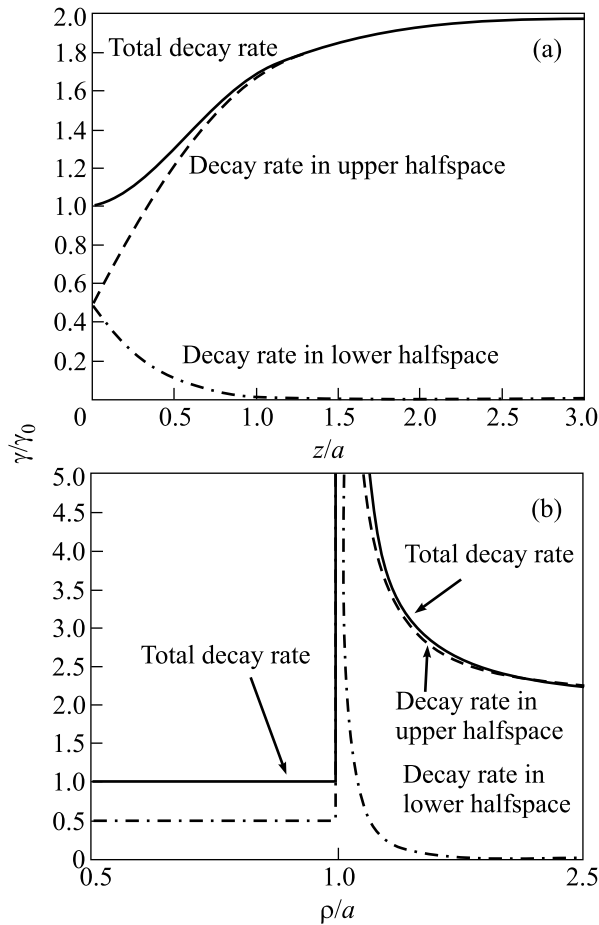


Рис.3. Зависимость скорости спонтанного распада атома при z -ориентации дипольного момента: (а) атом на оси системы; (б) атом в плоскости апертуры

Рассмотрим теперь скорость распадов для атома с z -ориентацией дипольного момента и расположенного в плоскости $z = 0$. В этой ситуации скорость распадов атома в самом отверстии не изменяется по сравнению со случаем свободного пространства при любом его положении, $d_{\text{tot},z}^+/d_0 = d_{\text{tot},z}^-/d_0 = 1$. Для атома, расположенного вблизи экрана ($z \rightarrow +0$, $\rho > a$), дипольные моменты, описывающие излу-

ние в верхнее и нижнее полупространства, принимают вид

$$\frac{d_{\text{tot},z}^{\pm}}{d_0} = 1 \pm \frac{2}{\pi} \left(\frac{a}{\sqrt{\rho^2 - a^2}} + \arcsin \frac{\sqrt{\rho^2 - a^2}}{a\rho} \right), \quad \rho > a. \quad (24)$$

На рис.3б показана полная скорость распадов, а также скорости распада в верхнее и нижнее полупространства для атома, расположенного в любом месте плоскости $z = 0$ с ориентацией дипольного момента вдоль оси z . Из выражения (24) и из рисунка видно, что вблизи кромки отверстия возникает существенное (неограниченное) ускорение скорости распадов, причем излучение распространяется как в верхнее, так и в нижнее полупространства. При учете конечности толщины экрана и конечности его проводимости скорость спонтанного распада атома вблизи кромки отверстия становится ограниченной.

В качестве еще одного частного случая (19)–(21) рассмотрим теперь скорость распадов атома с ρ -ориентацией дипольного момента и расположенного в плоскости $z = 0$. (Скорость распадов атома с φ -ориентацией дипольного момента в нашем приближении тождественно равна нулю). При $\rho < a$ дипольные моменты, описывающие поля в верхнем и нижнем полупространствах, будут иметь вид

$$\frac{d_{\text{tot},z}^{\pm}}{d_0} = \mp \frac{2}{\pi} \frac{\rho}{\sqrt{1 - \rho^2}}, \quad \rho < a. \quad (25)$$

Вне отверстия $\rho > a$ из-за граничных условий для идеально проводящей плоскости полный дипольный

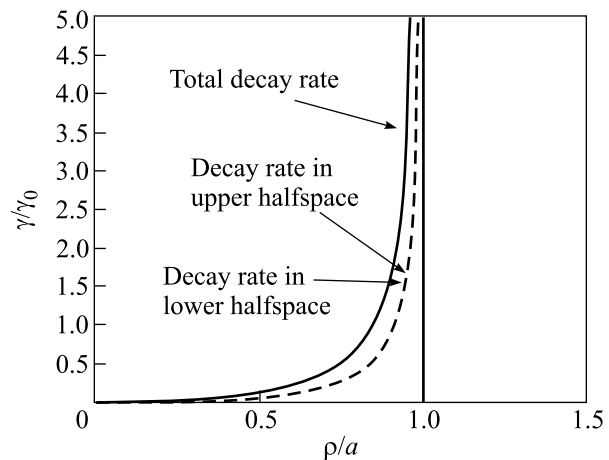


Рис.4. Зависимость скорости спонтанного распада атома, расположенного в плоскости апертуры, при ρ -ориентации дипольного момента

момент будет равен нулю. На рис.4 показана полная скорость распадов, а также скорости распада в верхнее и нижнее полупространства в случае атома,

расположенного в любом месте плоскости $z = 0$ и с ориентацией дипольного момента вдоль радиуса. Из выражения (25) и из рисунка видно, что вблизи кромки отверстия возникает существенное (неограниченное) ускорение скорости распадов, причем излучение распространяется как в верхнее, так и в нижнее полупространства. Учет конечности толщины экрана и его конечной проводимости снова приведет к ограничению скорости спонтанных распадов вблизи кромки отверстия.

Скорость спонтанных распадов атома, расположенного внутри отверстия и с вектором дипольного момента в плоскости отверстия, также рассматривалась в работах [15, 16], в которых скорости спонтанных распадов оказались величинами более высокого порядка малости ($\propto (ka)^2$), чем (21). По-видимому, в работе [15] не был учтен основной канал распада (дипольное излучение с z -ориентацией полного дипольного момента), а результаты [15] лишь частично описывают вклад мультиполей высших порядков (магнитного дипольного и электрического квадрупольного) в скорость спонтанного излучения.

Таким образом, в настоящей работе представлены аналитические выражения, которые позволяют относительно просто оценить скорости спонтанных распадов вблизи апертуры сканирующего микроскопа (наноотверстия). Полученные результаты также позволяют найти сдвиги частоты излучения атома из-за присутствия нанотверстия и интерпретировать результаты, полученные с помощью апертурных сканирующих микроскопов с одиночной молекулой в качестве объекта [17].

Автор выражает благодарность Российскому фонду фундаментальных исследований (грант # 01-02-16592) и ФЦП "Интеграция" за финансовую поддержку настоящей работы.

1. *Near Field Optics*, Eds. D.W. Pohl and D. Courjon, Kluwer Acad. Publ., Dordrecht, 1992.
2. *Near Field Nano/Atom Optics and Technology*, Ed. M. Ohtsu, Springer, 1998.
3. J. P. Fillard, *Near Field Optics and Nanoscopy*, World Scientific, 1997, 1998.
4. S. Kawata, Motoichi Ohtsu, and Masahiro Irie (Eds), *Nano-Optics*, Springer, 2002.
5. H. Gersen, M. F. Garcia-Parajó, L. Novotny et al., *Phys. Rev. Lett.* **85**, 5312 (2000).
6. H. Gersen, M. F. Garcia-Parajó, L. Novotny et al., *J. of Microscopy* **202**, 374 (2001).
7. J. A. Veerman, M. F. Garcia-Parajo, L. Kuipers et al., *J. of Microscopy* **194**, 477 (1999).
8. B. Sick, B. Hecht, U. P. Wild, and L. Novotny, *J. of Microscopy* **202**, 365 (2001).
9. R. R. Chance, A. Prock, and R. Silbey, *Adv. Chem. Phys.* **37**, 1(1978).
10. В. В. Климов, М. Дюклуа, В. С. Летохов, *Квантовая электроника* **31**, 569 (2001); В. В. Климов, *УФН* **173**, 1008 (2003).
11. Н. А. Bethe, *Phys. Rev.* **66**, 163 (1944).
12. C. J. Bouwkamp, *Philips Research Reports* **5**, 401 (1950).
13. В. И. Балыкин, В. В. Климов, В. С. Летохов, *Письма в ЖЭТФ* **78**, 11 (2003).
14. Г. Корн, Т. Корн, *Справочник по математике*, М.: Наука, 1974.
15. Т. В. Плахотник, *Оптика и спектроскопия* **79**, 747 (1995).
16. P. T. Leung, *OPTICS COMM.* **136**, 360 (1997).
17. V. V. Klimov, *Emission Properties of a single molecule placed near an aperture of an optical scanning microscope*, to be published.