

КОНФЕРЕНЦИИ И СИМПОЗИУМЫ

Плазмоника

Научная сессия Отделения физических наук
Российской академии наук, 21 февраля 2012 г.

PACS number: 01.10.Fv

DOI: 10.3367/UFNr.0182.201210g.1111

21 февраля 2012 г. в конференц-зале Физического института им. П.Н. Лебедева Российской академии наук (РАН) состоялась научная сессия Отделения физических наук РАН "Плазмоника".

Объявленная на web-сайте ОФН РАН www.grad.ac.ru повестка заседания содержала следующие доклады:

1. **Кукушкин И.В., Муравьев В.М.** (Институт физики твёрдого тела РАН, г. Черноголовка, Московская обл.). *Терагерцевая плазмоника.*

2. **Лозовик Ю.Е.** (Институт спектроскопии РАН, г. Троицк, Московская обл.). *Плазмоника и магнитоплазмоника на графене и топологическом изоляторе.*

3. **Проценко И.Е.** (Физический институт им. П.Н. Лебедева РАН, Москва). *Дипольный нанолазер.*

4. **Виноградов А.П., Андрианов Е.С., Пухов А.А., Дорофеев А.В.** (Институт теоретической и прикладной электродинамики РАН, Москва), **Lisyansky A.A.** (Queens College of the City University of New York, USA). *Квантовая плазмоника метаматериалов: перспективы компенсации потерь при помощи спазеров.*

5. **Климов В.В.** (Физический институт им. П.Н. Лебедева РАН, Москва). *Квантовая теория излучения оптически активных молекул вблизи киральных нанометаллических частиц.*

Статьи, написанные на основе докладов 2–5, публикуются ниже.

PACS numbers: 71.45.–d, 73.20.Mf, 73.22.–f
DOI: 10.3367/UFNr.0182.201210h.1111

Плазмоника и магнитоплазмоника на графене и топологическом изоляторе

Ю.Е. Лозовик

Плазмоника — одна из наиболее быстро развивающихся междисциплинарных областей физики. С фундаментальной точки зрения плазменные колебания в твёрдых телах — это управляемые кулоновским взаимодействием электронов коллективные колебания плотности электронного газа, закон дисперсии которых определяется в простейшем случае концентрацией электронов в зоне проводимости, диэлектрической проницаемостью среды

Ю.Е. Лозовик. Институт спектроскопии РАН, Москва, РФ, Московский физико-технический институт, г. Долгопрудный, Московская обл., РФ. E-mail: lozovik@isan.troitsk.ru

(кристалла без учёта электронов проводимости) и их эффективной массой. В общем случае, например, для межзонных плазмонов закон дисперсии плазмона зависит от электронной зонной структуры. Затухание плазменных колебаний определяется как одночастичными механизмами рассеяния носителей на примесях и т.п., так и затуханием Ландау, которое на микроскопическом языке соответствует распаду кванта плазменных колебаний — плазмона — на два одночастичных возбуждения — электрон и дырку, а на макроскопическом языке, как показано Гинзбургом, является обратным эффектом Вавилова–Черенкова (ускорением электрона полем плазменной волны). Возбуждение плазмонов, например, с помощью характеристических потерь электронов использовалось для характеристики твёрдых тел (см. [1–3] и цитируемую там литературу).

Плазмоника возникла в результате изучения плазмонов в низкоразмерных системах и структурах и разработки их применений. Специфика плазмонов (поверхностных и локальных) в этих системах состоит в том, что частота и затухание плазмонов в них определяется геометрией структуры и диэлектрической проницаемостью окружающей среды, поскольку силовые линии кулоновских полей взаимодействующих электронов проходят и через окружающую среду [4–7]. Последнее обстоятельство может быть использовано для создания сверхчувствительных плазмонных сенсоров (см. [8] и приведённые там ссылки). Возбуждение плазмонов широко используется в спектроскопии поверхности [9, 10], а возбуждение локальных плазмонов — для гигантского усиления комбинационного рассеяния света [11] и различных нелинейных оптических процессов (см., например, [12] и цитируемую там литературу). Интересно было бы создать полный набор управляющих элементов для двумерной, поверхностной плазмонной оптики (плазменные зеркала, линзы и т.д.). Обсуждалась также возможность реализации плазмонной оптики поверхности с временным разрешением, и были сделаны первые успешные шаги в этом направлении [13, 14]. Возбуждение локальных плазмонов на игле сканирующего зондового микроскопа падающим электромагнитным полем можно использовать для создания субволновой области под иглой с резко усиленным полем, которое в свою очередь было использовано для локальной спектроскопии и нанолитографии со сверхвысоким пространственным разрешением, существенно превосходящим рэлеевский предел (см. [15–17] и цитируемую там литературу).

Другим возможным применением плазмонов и плазмонных поляритонов является сверхбыстрая передача информации (например, между элементами чипа), быстрее, чем с помощью импульсов электронного тока. Наконец, интересной возможностью является развитие квантовой плазмоники для задач квантовой информатики и т.п.

Все эти перспективные применения существенно ограничиваются затуханием плазмонов, конечной длиной их свободного пробега. Это затруднение можно преодолеть с помощью активной плазмоники, использования спазеров — плазмонных аналогов лазеров [18–20]. В частности, с помощью использования спазера в форме иглы сканирующего зондового микроскопа и измерений индуцированных потерями провалов в его спектре генерации можно реализовать сверхчувствительную спектроскопию со сверхвысоким пространственным разрешением [21], являющуюся в определённом смысле спазерным аналогом селективной лазерной спектроскопии ближнего поля [22]; указанный метод можно использовать и для сверхчувствительной спазерной спектроскопии поверхности [23]. Спазерам посвящены также доклады на данной сессии ОФН РАН [24, 25].

Другой метод преодоления указанной трудности — поиск и использование принципиально новых систем с малым затуханием плазмонов, таких как допированный графен. Ниже мы кратко обсудим коллективные электронные и оптические свойства графена и топологических изоляторов, проанализированные в наших работах.

С фундаментальной точки зрения, огромный интерес к графену — одной изолированной плоскости графита, стабильной даже без подложки (см. обзоры [26–35] и цитируемую там литературу), и к недавно открытым (трёхмерным) топологическим изоляторам (см. обзоры [36, 37] и цитируемую там литературу) связан с тем, что в таких совершенно различных материалах, как графен и поверхности топологического изолятора, имеется двумерный электронный газ с эффективной массой, равной нулю, и нулевой щелью между зоной проводимости и валентной зоной. Этот двумерный электронный газ описывается уравнением Дирака с нулевой массой (как для нейтрино!), и поэтому здесь можно провести аналогию с ультрарелятивистской физикой элементарных частиц и кварковой материей. Это приводит к ряду интересных явлений: отсутствию отражения назад от потенциальных барьеров при нормальном падении (клейновскому туннелированию), слабой антилокализации, полному квантовому эффекту Холла (наблюдаемому даже при комнатной температуре!).

Следует подчеркнуть также отличие от физики ультрарелятивистских частиц: в уравнении Дирака для графена вместо скорости света стоит величина, в 300 раз меньшая, и это уравнение справедливо лишь в лабораторной системе отсчёта (поскольку при выводе эффективного уравнения Дирака для графена исходят из галилеевски инвариантного уравнения Шрёдингера).

Надо, конечно, помнить, что уравнению Дирака во внешнем поле подчиняются так называемые огибающие, описывающие медленную по сравнению с периодом решётки модуляцию (за счёт внешних медленно меняющихся полей) блоховских функций, осциллирующих с периодом решётки (при этом используется адиабатическое приближение, приводящее для обычных кристаллов к уравнению Шрёдингера с эффективной массой).

Линейный закон дисперсии графена впервые был установлен [38, 39] с помощью простого расчёта на основе уравнения Шрёдингера, учитывающего симметрию и наличие двух подрешёток в графене, в приближении взаимодействия ближайших соседей. Но этот линейный спектр (справедливый вплоть до энергий порядка 1 эВ), т.е. наличие эффективно дираковских электронов, связан, как можно показать, с симметрией графена, и данное свойство защищено от наличия примесей и прочего симметрией относительно обращения знака времени. Роль спина в уравнении Дирака играет псевдоспин, возникающий вследствие того, что гексагональная решётка в графене может быть представлена в виде двух эквивалентных треугольных решёток, сдвинутых относительно друг друга. Наличие ещё двух компонент в уравнении Дирака для графена связано со существованием двух независимых долин в зоне Бриллюэна для графена (поскольку наличие двух узлов в элементарной ячейке графена приводит к двум узлам в элементарной ячейке обратной решётки).

Интерес к графену, разумеется, подстёгивается перспективой многочисленных применений, связанных с его уникальными свойствами. Графен имеет толщину в один атом, так что в одном из измерений достигнут предельно малый размер для возможного элемента наноэлектроники или оптоэлектроники. Можно сказать, что благодаря открытию графена возник новый класс материалов — устойчивые даже в отсутствие подложки двумерные мембраны. Графен совместим с традиционной плоской технологией создания наноструктур (в отличие, например, от нанотрубок). Он может иметь большую подвижность электронов даже при комнатной температуре, а его теплопроводность существенно выше, чем у меди. Кроме того, прочность графена в 200 раз превосходит прочность стали. Благодаря этим замечательным свойствам перспективны применения графена для создания покрытий солнечных батарей и экранов, новых композиционных наноматериалов, ультраёмкостей, наноэлектронных элементов.

Интересным свойством графена является возможность изменения его транспортных характеристик при адсорбции молекул и т.п., что открывает перспективы для создания сверхчувствительных наносенсоров на его основе.

Важным свойством графена является возможность легко управлять плотностью электронов или дырок с помощью внешних управляющих электродов (или внешнего химического допирования).

Это можно использовать для транзисторов, но лишь аналоговых, а не цифровых, что связано с отсутствием энергетической щели в графене, поскольку невозможно запереть электрический ток в цифровых транзисторах. Однако если щель открыть с помощью геометрического квантования — использования графеновых лент либо биграфена в поперечном электрическом поле, то такие системы можно применять и в цифровых транзисторах. Управление концентрацией с помощью управляемых электродов в системе двух слоёв графена было предложено использовать для создания системы из двух разделённых слоёв дираковских электронов и дырок с равной концентрацией. В этой системе возможны бозе-эйнштейновская конденсация (БЭК) дипольных пар или экситонов в магнитном поле из пространственно разделённых электронов и дырок [40–42] (которые в графене из-за

отсутствия отражения электронов назад существуют лишь в магнитном поле) или их спаривание типа Бардина–Купера–Шриффера (БКШ) (см. [43–52]) за счёт кулоновского притяжения (аналогичного спариванию в трёхмерном экситонном диэлектрике [53, 54]), что приводит в рассматриваемой системе к существованию незатухающих электрических токов в каждом из слоёв. Отличием бислоя графена от бислоя спаренных электронов и дырок с ненулевой массой [55] является отсутствие обычного кроссовера БЭК–БКШ (без магнитного поля) при уменьшении концентрации спаривающихся частиц и наличии связанного со спиновой природой дираковской волновой функции углового фактора, подавляющего рассеяние назад. Рассмотренную систему можно использовать как бездиссипативную линию передачи информации. Аналогичную систему пространственно разделённых дираковских электронов и дырок, их спаривание и сверхтекучесть можно осуществить независимым допированием с помощью независимых управляющих электродов для противоположных поверхностей сверхтонкой плёнки топологического диэлектрика (см. [56] и приведённые там ссылки). Сильное допирование может привести к возникновению собственной сверхпроводимости в графене (см. [57] и приведённые там ссылки).

Специфика зонной структуры графена приводит к интересным особенностям его диэлектрического отклика — наличию особенности в области низких частот (как и для металла, но более слабой), к очень необычным оптическим свойствам [58], а также к слабому затуханию квазичастиц в нём. Эти свойства делают весьма перспективным создание фотонных кристаллов на основе графена, имеющего почти не замытую затуханием фотонную щель (в отличие от таковой в металлах) в далёкой инфракрасной области спектра [59].

Возможность управления концентрацией электронов в графене с помощью управляющих электродов открывает широкую перспективу для плазмоники на основе графена [60–64]. В частности, можно создавать с помощью специальным образом профилированных покрытий и управляющих электродов на графене плазмонные волноводы и плазмонные переключатели. Важнейшим дополнительным достоинством графена для плазмоники является слабое затухание и большая длина свободного пробега плазмонов в нём, а также и возможность работать в терагерцевой области частот. Слабое затухание открывает возможность создания квантовой плазмоники, "одноплазмоники", базирующейся на графене.

Интересно также управлять плазмонами в графене и основанных на нём метаматериалах с помощью внешнего магнитного поля (см. [62] и цитируемую там литературу). Мы рассмотрели свойства поляритонов в оптической микрополости, в которую погружён графен (рис. 1) и их свойства в терагерцевой области частот [63, 64]. Мы рассмотрели также ТЕ- и ТМ-моды на графене, который граничит с двумя соседними средами с малым диэлектрическим контрастом между ними. В области частот, где мнимая часть диэлектрической функции мала, свойства системы, как оказалось, критическим образом зависят от малого диэлектрического контраста между средами. Это приводит к утеканию поверхностной волны, что открывает возможность создания сверхчувствительного сенсора на основе этой системы [65].

Интересной также является возможность управления коллективными возбуждениями в графене, а также по-

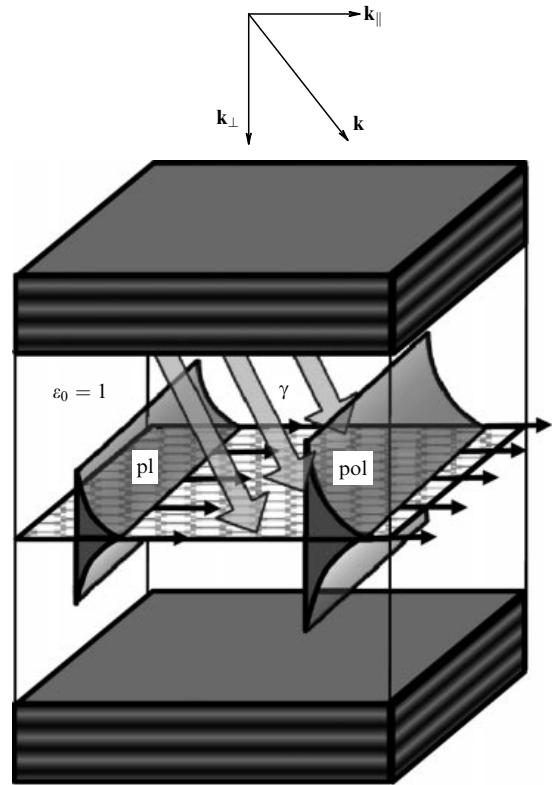


Рис. 1. Поляритон (pol) в оптической микрополости, в которую погружён графен; pl — плазмон, γ — фотон.

ляритонами в оптической микрополости, в которую погружён графен, с помощью эффектов кулоновского увлечения током электронов в соседнем с графеном слое двумерного электронного газа в квантовой яме [66].

Как указывалось выше, дираковские электроны существуют не только в графене, но и на поверхностях недавно открытых новых материалов — трёхмерных топологических диэлектриков [36, 37]. В настоящее время изучены двумерные и трёхмерные реализации топологических изоляторов. Новой парадигмой является то, что топологические изоляторы связаны не с возникновением спонтанного нарушения симметрии в кристалле и связанного с свою очередь с ним параметра порядка (как в случае, например, магнетиков, сегнетоэлектриков и т.п.), а с появлением топологического инварианта в гильбертовом пространстве, определяемого свойствами занятых электронами блоховских состояний. В этом смысле имеется аналогия свойств топологических изоляторов и квантового эффекта Холла, в котором в области плато внутри системы все состояния не являются проводящими, но на границе системы имеются бесщелевые киральные состояния (однонаправленный ток, определяющийся направлением магнитного поля), защищённые от влияния примесей и т.п. наличием топологического инварианта в гильбертовом пространстве. Особенно просто эта картина выглядит в достаточно сильных магнитных полях, в условиях применимости дрейфового приближения для электронов, когда топологический инвариант имеет простой смысл — он характеризует связность дрейфовых траекторий электронов [67]. В трёхмерных (так называемых сильных) топологических изоляторах имеется щель в спектре объёмных состояний,

как и в обычных изоляторах, но на поверхности они из-за наличия топологического инварианта имеют бесщелевые поверхностные электронные состояния с нулевыми эффективными массами электронов и дырок (как в графене), описываемые уравнением Дирака с нулевой массой.

Эти состояния топологически защищены — обычные, немагнитные, примеси в силу наличия топологического инварианта не могут создать щель и локализовать эти состояния. Одним из важных свойств уравнения Дирака с нулевой массой является жёсткая связь направлений импульса и спина электронов (для графена — импульса и псевдоспина).

Вследствие сильного спин-орбитального взаимодействия электроны на поверхности топологического изолятора имеют жёсткую корреляцию направления спина и импульса — их спин перпендикулярен импульсу, и это свойство подтверждено экспериментально с помощью фотоэлектронной спектроскопии с угловым и спиновым разрешением. Аналогичная жёсткая связь импульса и псевдоспина (а не спина!) имеется и для графена в силу математической эквивалентности уравнений Дирака с нулевой массой для обеих систем, из которой и следует указанная связь.

Эта связь приводит, в частности, к необычным свойствам плазмонов на поверхности топологических изоляторов (см. [68–70]). Плазмон на квантовом языке может быть представлен как когерентная суперпозиция возбуждённых, сдвинутых по импульсам пар электронов и дырок, соответствующих для допированного графена как внутризонным ($\gamma = \gamma'$), так и межзонным ($\gamma \neq \gamma'$) переходам, так что оператор рождения плазмона определяется линейной суперпозицией операторов рождения и уничтожения электронов:

$$Q_q^+ = \sum_{p\gamma\gamma'} C_{pq}^{\gamma\gamma'} b_{p+q}^+ b_{p\gamma},$$

где \mathbf{p} и \mathbf{q} — двумерные импульсы.

Используя соответствующую приближению хаотических фаз линеаризацию уравнений движения для дираковских электронов, можно найти закон дисперсии плазмонов. Применимость приближения хаотических фаз определяется безразмерным квантовым параметром, равным отношению характерной энергии кулоновского

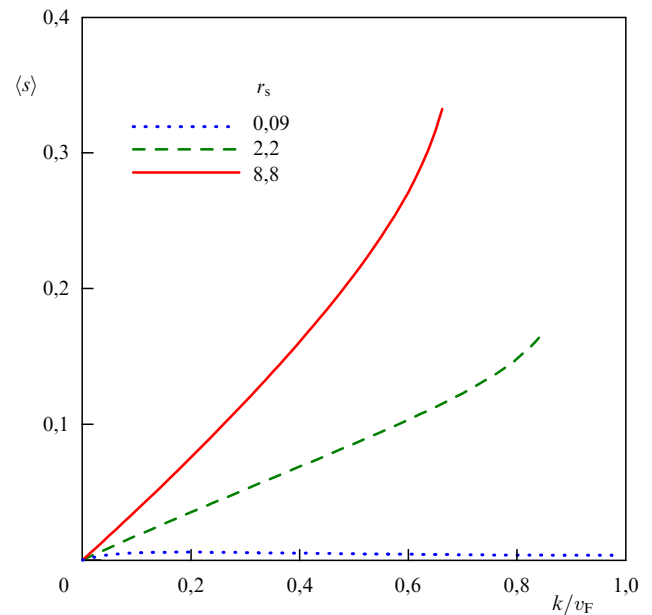


Рис. 2. Среднее значение спина, индуцированного одним плазмоном в двумерном дираковском газе на поверхности топологического изолятора, в зависимости от его волнового вектора, делённого на скорость Ферми. Параметр r_s — безразмерная константа связи дираковских электронов (эффективная постоянная тонкой структуры).

взаимодействия и квантовой кинетической энергии. Это отношение для дираковских электронов с линейным законом дисперсии не зависит от концентрации электронов и равняется эффективной постоянной тонкой структуры, в которой скорость света заменена скоростью электрона, входящей в уравнение Дирака для топологического изолятора (и графена), а квадрат заряда поделён на диэлектрическую проницаемость окружающей среды. Поскольку последняя для топологических изоляторов велика, это обеспечивает применимость приближения хаотических фаз.

С выделенным значением импульса плазмона связана и выделенность импульса электронов и дырок, определяющих оператор рождения плазмона. Вследствие жёсткой связи импульса и спина дираковских электронов

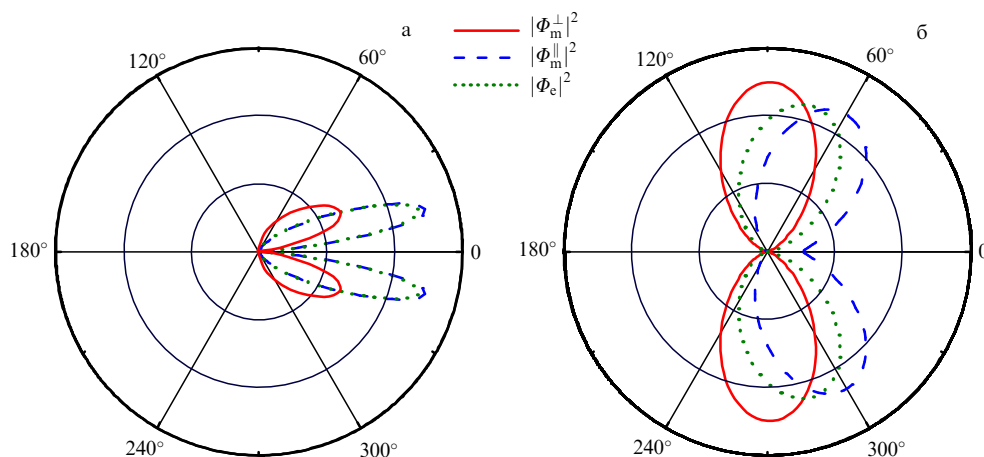


Рис. 3. Угловая диаграмма рассеяния спин-плазмона с импульсом $p = 0,2$ (делённым на фермиевскую скорость) на неоднородностях электрического поля (а) и в неоднородном магнитном поле (б). Φ_m^\perp , Φ_m^\parallel — магнитные формфакторы, Φ_e — электрический формфактор.

возникает и выделенный спин. Так что плазменная волна в топологическом изоляторе всегда связана со спиновой волной! Более того, при рождении плазмона возникает и нескомпенсированная полная спиновая поляризация (рис. 2). При рассеянии спин-плазмона на неоднородностях электрического или магнитного поля угловая диаграмма оказывается сильно анизотропной, состоящей из двух лепестков (рис. 3).

Интересные эффекты возникают, если на поверхность топологического изолятора нанести слой магнитной примеси или плёнку магнитного материала. Своим внешним обменным взаимодействием с дираковскими электронами (неинвариантным относительно обращения знака времени) этот слой индуцирует щель в спектре дираковских электронов, и топологический изолятор становится квантовым магнитоэлектриком — внешнее электрическое поле индуцирует (помимо обычной электрической поляризации объёма) магнитный момент, а магнитное поле — электрический дипольный момент. Это приводит, в частности, к появлению квантованной недиагональной холловской проводимости, а поэтому и к квантовому эффекту Фарадея и Керра — квантованным поворотам плоскости поляризации проходящей или отражённой электромагнитной волны (в отсутствие внешнего магнитного поля!). Киральные свойства системы приводят и к киральным свойствам экситонов внутри щели топологического диэлектрика (зависимости энергии от знака проекции момента). Поэтому такие киральные экситоны дают резонансный вклад в недиагональную проводимость системы, что может резко усилить эффект Фарадея по сравнению с его квантованным значением (определяемым лишь постоянной тонкой структуры) (см. [71, 72] и приведённые там ссылки).

Электроны над поверхностью топологического изолятора с киральными двумерными (2D) электронами своим кулоновским полем индуцируют такую магнитную поляризацию, которая в силу симметрии задачи эквивалентна наличию магнитных монополей изображения (аналогично зарядам изображения). Для достаточно плотного газа 2D-электронов возникающее суммарное внешнее магнитное поле от всех монополей изображения можно считать однородным и пропорциональным поверхностной плотности внешних электронов и магнитному заряду монополя. Это поле может проявиться в эффекте Холла для внешних электронов и в изменении закона дисперсии их плазменных колебаний. Для разреженной системы внешних электронов они должны проявлять эффект Боме–Ааронова на магнитных потоках, связанных с чужими монополями изображения, и потому являться анионами — частицами с дробной статистикой (см. [73] и приведённые там ссылки).

Работа поддержана грантом РФФИ 11-02-00858.

Список литературы

1. Keldysh L V, Kirzhnits D A, Maradudin A A (Eds) *The Dielectric Function of Condensed Systems* (Amsterdam: North-Holland, 1989)
2. Киржниц Д А *Полевые методы теории многих частиц* (М.: Госатомиздат, 1963) [Kirzhnits D A *Field Theoretical Methods in Many-Body Systems* (Oxford: Pergamon Press, 1967)]
3. Pines D *Elementary Excitations in Solids* (New York: W.A. Benjamin, 1963) [Пайнс Д *Элементарные возбуждения в твердых телах* (М.: Мир, 1965)]
4. Lozovik Yu E, Klyuchnik A V, in *The Dielectric Function of Condensed Systems* (Eds L V Keldysh, D A Kirzhnits, A A Maradudin) (Amsterdam: North-Holland, 1989) Ch. 5
5. Климов В В *Наноплазмоника 2-е изд.* (М.: Физматлит, 2010)
6. Shalaev V M, Kawata S (Eds) *Nanophotonics with Surface Plasmons* (Amsterdam: Elsevier, 2007)
7. Bozhevolnyi S I (Ed.) *Plasmonic Nanoguides and Circuits* (Singapore: Pan Stanford Publ., 2009)
8. Zalyubovskiy S J et al. *J. Opt. Soc. Am. A* **29** 994 (2012)
9. Agranovich V M, Mills D L (Eds) *Surface Polaritons. Electromagnetic Waves at Surfaces and Interfaces* (Amsterdam: North-Holland, 1982) [Агранович В М, Миллс Д Л (Ред.) *Поверхностные поляритоны: электромагнитные волны на поверхностях и границах раздела сред* (М.: Наука, 1985)]
10. Agranovich V *Excitations in Organic Solids* (Oxford: Oxford Univ. Press, 2009)
11. Kneipp K, Moskovits M, Kneipp H (Eds) *Surface-Enhanced Raman Scattering. Physics and Applications* (Berlin: Springer, 2006)
12. Aiboushev A V et al. *Phys. Status Solidi C* **6** (S1) S162 (2009)
13. Lozovik Yu E et al. *Phys. Lett. A* **276** 127 (2000)
14. Lozovik Yu E et al. *Письма в ЖЭТФ* **75** 551 (2002) [*JETP Lett.* **75** 461 (2002)]
15. Лозовик Ю Е, Меркулова С П *УФН* **169** 348 (1999) [Lozovik Yu E, Merkulova S P *Phys. Usp.* **42** 284 (1999)]
16. Lozovik Yu E, Klyuchnik A V, Merkulova S P *Laser Phys.* **9** 552 (1999)
17. Lozovik Yu E et al. *Laser Phys.* **9** 564 (1999)
18. Bergman D J, Stockman M I *Phys. Rev. Lett.* **90** 027402 (2003)
19. Protsenko I E et al. *Phys. Rev. A* **71** 063812 (2005)
20. Lisyansky A A et al. *Phys. Rev. B* **84** 153409 (2011)
21. Lozovik Yu E et al., arXiv:1208.3389, to be published
22. Kolesnikov A A, Lozovik Yu E, Merkulova S P *J. Russ. Laser Res.* **31** 469 (2010)
23. Lozovik Yu E et al., to be published
24. Проценко И Е *УФН* **182** 1117 (2012) [Protsenko I E *Phys. Usp.* **55** (10) (2012)]
25. Виноградов А П и др. *УФН* **182** 1123 (2012) [Vinogradov A P et al. *Phys. Usp.* **55** (10) (2012)]
26. Гейм А К *УФН* **181** 1284 (2011); Geim A K *Rev. Mod. Phys.* **83** 851 (2011)
27. Новосёлов К С *УФН* **181** 1299 (2011); Novoselov K S *Rev. Mod. Phys.* **83** 837 (2011)
28. Castro Neto A H et al. *Rev. Mod. Phys.* **81** 109 (2009)
29. Katsnelson M I *Mater. Today* **10** (1–2) 20 (2007)
30. Das Sarma S et al. *Rev. Mod. Phys.* **83** 407 (2011)
31. Kotov V N et al. *Rev. Mod. Phys.* **84** 1067 (2012)
32. Морозов С В, Новоселов К С, Гейм А К *УФН* **178** 776 (2008) [Morozov S V, Novoselov K S, Geim A K *Phys. Usp.* **51** 744 (2008)]
33. Лозовик Ю Е, Меркулова С П, Соколик А А *УФН* **178** 757 (2008) [Lozovik Yu E, Merkulova S P, Sokolik A A *Phys. Usp.* **51** 727 (2008)]
34. Abergel D S L et al. *Adv. Phys.* **59** 261 (2010)
35. Katsnelson M I *Graphene: Carbon in Two Dimensions* (Cambridge: Cambridge Univ. Press, 2012)
36. Hasan M Z, Kane C L *Rev. Mod. Phys.* **82** 3045 (2010)
37. Qi X-L, Zhang S-C *Rev. Mod. Phys.* **83** 1057 (2011)
38. Wallace P R *Phys. Rev.* **71** 622 (1947)
39. Slonczewski J C, Weiss P R *Phys. Rev.* **109** 272 (1958)
40. Berman O L, Lozovik Yu E, Gumbs G *Phys. Rev. B* **77** 155433 (2008)
41. Lozovik Yu E, Sokolik A A, Willander M *Phys. Status Solidi A* **206** 927 (2009)
42. Berman O L, Kezerashvili R Ya, Lozovik Yu E *Nanotechnology* **21** 134019 (2010)
43. Lozovik Y E, Sokolik A A *Письма в ЖЭТФ* **87** 61 (2008) [*JETP Lett.* **87** 55 (2008)]
44. Bistrizter R et al., arXiv:0810.0331
45. Kharitonov M Yu, Efetov K B *Semicond. Sci. Technol.* **25** 034004 (2010)
46. Lozovik Y E, Sokolik A A *Eur. Phys. J. B* **73** 195 (2010)
47. Lozovik Yu E, Sokolik A A *Phys. Lett. A* **374** 326 (2009)
48. Mink M P et al. *Phys. Rev. B* **84** 155409 (2011)
49. Lozovik Yu E, Ogarkov S L, Sokolik A A *Phys. Rev. B* **86** 045429 (2012)
50. Ефимкин Д К, Лозовик Ю Е *ЖЭТФ* **140** 1009 (2011) [Efimkin D K, Lozovik Yu E *JETP* **113** 880 (2011)]
51. Ефимкин Д К, Kulbachinskii V A, Lozovik Yu E *Письма в ЖЭТФ* **93** 238 (2011) [*JETP Lett.* **93** 219 (2011)]

52. Efimkin D K, Lozovik Yu E *Fullerenes Nanotubes Carbon Nanostruct.* **20** 569 (2012)
53. Келдыш Л В, Копаев Ю В *ФТТ* **6** 2791 (1964) [Keldysh L V, Korpaev Yu V *Sov. Phys. Solid State* **6** 2219 (1965)]
54. Козлов А Н, Максимов Л А *ЖЭТФ* **48** 1184 (1965) [Kozlov A N, Maksimov L A *Sov. Phys. JETP* **21** 790 (1965)]
55. Лозовик Ю Е, Юдсон В И *Письма в ЖЭТФ* **22** 556 (1975) [Lozovik Yu E, Yudson V I *JETP Lett.* **22** 274 (1975)]
56. Efimkin D K, Lozovik Y E, Sokolik A A *Phys. Rev. B* (in print); arXiv:1207.1817
57. Lozovik Yu E, Sokolik A A *Phys. Lett. A* **374** 2785 (2010)
58. Фальковский Л А *УФН* **178** 923 (2008) [Falkovsky L A *Phys. Usp.* **51** 887 (2008)]
59. Berman O L, Kezerashvili R Ya, Lozovik Yu E *Phys. Lett. A* **374** 3681 (2010)
60. Mikhailov S A, Ziegler K *Phys. Rev. Lett.* **99** 016803 (2007)
61. Koppens F H L, Chang D E, Javier Garcia de Abajo F *Nano Lett.* **11** 3370 (2011)
62. Berman O L, Gumbs G, Lozovik Yu E *Phys. Rev. B* **78** 085401 (2008)
63. Kotov O V, Lozovik Yu E *Phys. Lett. A* **375** 2573 (2011)
64. Kotov O V, Lozovik Yu E *Fullerenes Nanotubes Carbon Nanostruct.* **20** 563 (2012)
65. Kotov O V, Lozovik Yu E, to be published
66. Berman O L, Kezerashvili R Ya, Lozovik Yu E *Phys. Rev. B* **82** 125307 (2010)
67. Апенко С М, Лозовик Ю Е *ЖЭТФ* **89** 573 (1985) [Apenko S M, Lozovik Yu E *Sov. Phys. JETP* **62** 328 (1985)]
68. Efimkin D K, Lozovik Yu E, Sokolik A A *Nanoscale Res. Lett.* **7** 163 (2012)
69. Tse W-K et al. *Phys. Rev. Lett.* **105** 057401 (2010)
70. Efimkin D K, Lozovik Yu E, Sokolik A A *J. Magn. Magn. Mater.* **324** 3610 (2012); arXiv:1107.4695
71. Efimkin D K, Lozovik Yu E *Phys. Rev. B*, submitted; arXiv:1208.3320
72. Raghu S et al. *Phys. Rev. Lett.* **104** 116401 (2010)
73. Лозовик Ю Е, to be published

PACS numbers: 42.55.Ah, 42.70.Nq, 78.67.Bf
DOI: 10.3367/UFNr.0182.201210i.1116

Теория дипольного нанолазера

И.Е. Проценко

1. Введение

В статье теоретически исследуется когерентная генерация дипольного момента металлической наночастицы при возбуждении в ней локализованного плазмонного резонанса с помощью генератора (атома, квантовой точки и т.п.), в котором обеспечивается инверсная населённость электронных состояний. Генератор и наночастица взаимодействуют между собой через ближнее поле. Данная наноразмерная система — "дипольный" нанолазер (ДНЛ) — при выполнении пороговых условий излучает когерентное электромагнитное поле. Выводятся базовые и упрощённые уравнения ДНЛ, обсуждаются пороговые условия генерации, особенности ДНЛ, связанные с некогерентной генерацией дипольного момента, некоторые приборы на основе ДНЛ: широкополосные оптические модуляторы, высокоэффективные светоизлучающие устройства, а также возможные схемы ДНЛ и дальнейшие направления их теоретического исследования.

И.Е. Проценко. Физический институт им. П.Н. Лебедева РАН, Москва, РФ; ООО "Плазмоника", Москва, РФ
E-mail: protsen@sci.lebedev.ru, protsenk@gmail.com

Исследования резонансного взаимодействия электромагнитного излучения с металлическими частицами имеют давнюю историю [1–3]. Сейчас эти исследования переживают подъём, появился новый раздел физики — наноплазмоника [4], что связано как с развитием нанотехнологий, так и с новыми практическими задачами: по управлению светом в оптоэлектронике [5, 6], увеличению эффективности солнечных элементов с помощью металлических наночастиц [7] и т.д. Металлические наночастицы, обладающие локализованными плазмонными резонансами (ЛПР), могут использоваться как антенны оптического или ближнего инфракрасного диапазонов [8], в том числе при создании наноразмерных лазеров. Метод генерации когерентного излучения и дипольный нанолазер на его основе были предложены в [9], соответствующая теория, которая была развита в [10–17], использовалась, например, в [18, 19]. Независимо и практически одновременно с [9] в работе [20] были предложены метод генерации поверхностных плазмонов и устройство спазер (от англ. аббревиатуры SPASER — Surface Plasmon Amplification by Stimulated Emission of Radiation), близкое к ДНЛ. Теория спазера разрабатывалась в [21] и в других работах. Исследовалась также возможность компенсации потерь в активных средах с металлическими наночастицами [22] — эта компенсация потерь имеет место и в ДНЛ, и в спазере. Проведён ряд экспериментов с близкими к ДНЛ устройствами, работающими как ниже [23, 24], так и выше [25, 26] порога генерации; полную библиографию исследований ДНЛ и спазера трудно изложить в короткой статье.

Целью настоящей статьи является краткое изложение теории ДНЛ и рассмотрение некоторых её новых особенностей. Теория ДНЛ основывается на известных уравнениях одномодового лазера [27], в которых мода электромагнитного поля заменяется дипольным моментом, возникающим в результате резонансных колебаний электронной плотности наночастицы. Квант линейных колебаний электронной плотности является бозоном, как и квант электромагнитного поля (ЭМП), поэтому возможна когерентная (лазерная) генерация колебаний электронной плотности, аналогичная когерентной генерации бозонов ЭМП. Возможность лазерной генерации не только квантов ЭМП, но и других бозонов, например бозе-конденсатов атомов в ловушках [28], отмечалась ранее. Базовые уравнения ДНЛ обосновывают возможность не только когерентной генерации дипольного момента и излучения, но и других лазерных эффектов в системах, аналогичных ДНЛ. Развитие базовых уравнений приводит ко всё более реалистичным моделям ДНЛ и связанных с ним устройств. При этом можно использовать известные подходы как лазерной теории, например, при описании спонтанного излучения в моду [29, 30], так и классической электродинамики, например, при описании мод ДНЛ [3]. Часто оказывается, что эффекты, малозначительные в "классической" лазерной теории, оказываются весьма важными для ДНЛ, как, например, беспороговая лазерная генерация [30] или эффекты локального поля [31]. Развитие базовых уравнений ДНЛ приводит к моделям, отличным от их аналогов в лазерной теории; например, уравнения для ДНЛ во внешнем поле с учётом спонтанного излучения в моду [17] существенно отличаются от уравнений для обычного лазера с внешним сигналом [27]. Теория ДНЛ является весьма интересной, так как естественным образом совме-

щает в себе классические эффекты нелинейной динамики колебательных систем (пороговые эффекты, бистабильность и т.п.) и особенности квантовой электродинамики (спонтанное излучение, квантовые шумы, излучение отдельных фотонов). Всё это делает ДНЛ интересным объектом фундаментальных исследований, но не менее интересны и практические применения ДНЛ.

В разделе 2 даётся вывод уравнений ДНЛ, более общий, чем в [10], без привлечения квазистатического приближения и предположения о пренебрежимо малых размерах наночастицы. В разделе 3 выполняется упрощение базовых уравнений — они приводятся к виду [10], удобному для приложений; обсуждаются условия применимости уравнений, рассматриваются уравнения ДНЛ со многими атомами. В разделах 4, 5 оцениваются условия генерации ДНЛ и указывается на возможность бифуркации в генерации, когда скачкообразно изменяется направление диполей; учитывается также некогерентная (спонтанная) генерация дипольного момента ДНЛ с несколькими атомами. В заключении обсуждаются перспективы развития теории ДНЛ.

2. Базовые уравнения дипольного нанолазера

Простая схема ДНЛ — металлическая наночастица и расположенная вблизи неё излучающая двухуровневая система (атом, молекула, квантовая точка и т.п.), в которой инверсная населённость состояний обеспечивается с помощью некогерентной внешней накачки: широкополосного светового импульса, тока инжекции и т.д. (рис. 1а). Частота ω_{LPR} локализованного плазмонного резонанса металлической наночастицы близка к частоте ω_2 перехода двухуровневой системы, и между частицами существует резонансное взаимодействие через ЭМП.

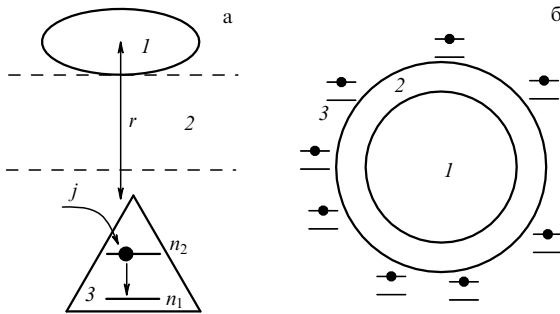


Рис. 1. Схемы ДНЛ. (а) Металлическая наночастица 1 отделена диэлектрическим подслоем 2 от двухуровневой системы — квантовой точки 3. (б) ДНЛ типа "ядро-оболочка".

Известны уравнения для двухуровневой системы [32] во внешнем резонансном поле $\mathcal{E} = e[E(t) \exp(-i\omega t) + E^+(t) \exp(i\omega t)]$, где e — единичный вектор, амплитуда $E(t)$ изменяется медленнее, чем $\exp(-i\omega t)$. В приближении медленно изменяющихся амплитуд

$$\dot{D} = \frac{2i\mu e}{\hbar} (E\sigma^+ - E^+\sigma) - \tau^{-1}(D - D_0), \quad (1)$$

$$\dot{\sigma} = (i\delta_2 - \Gamma_2)\sigma - i \frac{\mu e}{\hbar} ED, \quad (2)$$

где D — инверсия населённостей, μ — действительный матричный элемент дипольного момента, τ^{-1} , Γ_2 —

скорости релаксации населённости верхнего уровня двухуровневой системы и её дипольного момента соответственно, D_0 — равновесное значение инверсии населённостей в отсутствие поля, обусловленное накачкой, $\delta_2 = \omega - \omega_2 \ll \omega_2$; дипольный момент двухуровневой системы $\mathbf{d}_2 = \mu[\sigma \exp(i\omega t) + \sigma^+ \exp(-i\omega t)]$, её магнитный момент полагается равным нулю; резонансная частота перехода между состояниями $\omega_2 \approx \omega_{LPR}$.

При замене в (2) σ бозе-оператором a , $[a^+, a] = 1$ и при $D = -1$ получается уравнение движения для дипольного момента $\mathbf{d}_0 = \mu_0[a \exp(i\omega t) + a^+ \exp(-i\omega t)]$ наночастицы — линейного диполя (гармонического осциллятора) в резонансном ЭМП:

$$\dot{a} = (i\delta - \Gamma_{LPR})a + i \frac{\mu_0 e}{\hbar} E, \quad (3)$$

где $\delta = \omega - \omega_{LPR} \ll \omega_{LPR}$, Γ_{LPR} — ширина линии ЛПР, a можно назвать оператором уничтожения плазмонов.

Двухуровневая система рассматривается как точечный диполь. Следует принять во внимание конечные размеры наночастицы: двухуровневая система может быть расположена близко к наночастице, так что поле системы заметно изменяется в области, которую занимает наночастица. Как правило, размеры наночастицы меньше длины волны ЭМП, поэтому внутри наночастицы применимо квазистатическое приближение и поляризация (дипольный момент единицы объёма) там везде одинакова [4]. Введём бозе-оператор $p(\mathbf{r})$ амплитуды поляризации, $a = \int_V p(\mathbf{r}) dV$, где V — объём наночастицы. Коммутационные соотношения $[p(\mathbf{r}), p^+(\mathbf{r}')] = V\delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}')$ обеспечивают выполнение $[a, a^+] = 1$ для бозе-оператора a ; \mathbf{r} , \mathbf{r}' — радиусы-векторы точек внутри наночастицы. Уравнение движения для $p(\mathbf{r})$ имеет вид

$$\dot{p}(\mathbf{r}) = (i\delta - \Gamma_{LPR})p(\mathbf{r}) + i \frac{\mu_0 e}{V\hbar} E(\mathbf{r}).$$

Интегрируя обе части этого уравнения по объёму наночастицы, находим

$$\dot{a} = (i\delta - \Gamma_{LPR})a + i \frac{\mu_0}{\hbar} \bar{E}_\mu, \quad (4)$$

$$\bar{E}_\mu(r) = V^{-1} \int_V \mathbf{e}_\mu \mathbf{e}(\mathbf{r}') E(\mathbf{r}') d^3r',$$

где \bar{E}_μ — средняя по объёму наночастицы проекция амплитуды внешнего поля на возбуждаемую моду поляризации, в рассматриваемом случае — на направление дипольного момента наночастицы, \mathbf{e}_μ — единичный вектор в направлении дипольного момента наночастицы, r — расстояние от центра наночастицы до двухуровневой системы. Для сферической наночастицы в квазистатическом приближении $\bar{E}_\mu(r) = E(\mathbf{r})$, в чём можно убедиться непосредственно.

Теперь можно описать взаимодействие через переменное электрическое поле двухуровневой системы и металлической наночастицы, расположенных на некотором расстоянии друг от друга в однородной прозрачной среде с показателем преломления n_2 . Обозначим электрическое поле, создаваемое частицей в области расположения двухуровневой системы, индексом 02, а поле, создаваемое двухуровневой системой в области расположения частицы, — индексом 20. Используя уравнения (1)–(3), приходим к системе уравнений движения для обоих диполей — частицы и двухуровневой системы —

с учётом их диполь-дипольного взаимодействия:

$$\dot{D} = 2i \frac{\mu \mathbf{e}_{02}}{\hbar} (\sigma^+ E_{02} - E_{02}^+ \sigma) - \tau^{-1} (D - D_0), \quad (5)$$

$$\dot{\sigma} = (i\delta_2 - \Gamma_2)\sigma - i \frac{\mu \mathbf{e}_{02}}{\hbar} E_{02} D, \quad (6)$$

$$\dot{a} = (i\delta - \Gamma_{\text{LPR}})a + i \frac{\langle \mu_0 \mathbf{e}_{20} E_{20} \rangle_V}{\hbar}, \quad (7)$$

здесь $\langle \dots \rangle_V$ означает усреднение по объёму наночастицы. Используя выражение для фурье-компоненты излучения диполя [33], приближение медленно изменяющихся амплитуд и спектральные разложения $E_{02}(t)$ и $E_{20}(t)$ в интегралы Фурье, можно показать, что амплитуды электрических полей, входящие в уравнения (5)–(7), записываются как

$$\mu \mathbf{e}_{02} E_{02}(t) = -\frac{\mu_0 \mu}{r^3} \xi(k_2 r) \sigma \left(t - \frac{n_2 r}{c_0} \right), \quad (8)$$

$$\mu_0 \mathbf{e}_{20} E_{20}(t) = -\frac{\mu_0 \mu}{r^3} \xi^*(k_2 r) a \left(t - \frac{n_2 r}{c_0} \right),$$

$$\xi(\rho) = \exp(i\rho) [(1 - \rho^2 - i\rho) + \cos^2 \theta_r (\rho^2 + 3i\rho - 3)],$$

где $\rho = k_2 r$, r — расстояние от диполя до точки наблюдения, $k_2 = n_2 \omega / c_0$, \mathbf{n} — единичный вектор в направлении от диполя к точке наблюдения, θ_r — угол между \mathbf{n} и параллельными друг другу $\mathbf{d}_{0,2}$, который будет определён ниже. Во второе выражение в (8) входит ξ^* , в то время как в первое — ξ , поскольку поля от частицы 0 к частице 2 и наоборот распространяются в противоположных направлениях. В правой части (8) находятся величины поляризации диполей, запаздывающие на время $n_2 r / c_0$ распространения ЭМП между частицами.

Уравнения (5)–(8) представляют собой базовые уравнения ДНЛ. Переменными в них являются инверсия населённости D и дипольные моменты σ и a . Электромагнитные поля в уравнения не входят, поля вне ДНЛ могут быть определены из (8) и соответствующих выражений для магнитных полей диполей. В ДНЛ место моды поля занимает мода a поляризации (дипольного момента) наночастицы, что и обусловило название "дипольный" нанолазер. Вместо поляризации наночастицы можно рассматривать поле внутри её, которое в квазистатическом приближении и при возбуждении "дипольной" моды отличается от поляризации лишь множителем: электрической восприимчивостью материала наночастицы. Аналогичным способом могут быть выведены уравнения в случае, если возбуждается не дипольная, а другая, например квадрупольная, мода колебаний электронной плотности наночастицы, которая имеет и другую частоту ЛПР. Точно известны моды колебаний поля (или поляризации) внутри и вне сферических частиц [3], их можно использовать для анализа ДНЛ с большими сферическими частицами, когда квазистатическое приближение внутри них неприменимо. В случае небольших несферических наночастиц можно использовать квазистатическое приближение для описания поляризации частиц (полей внутри частиц) и мультипольные разложения для описания полей вне частиц [33].

Уравнения (5)–(8) — операторные, переменные в них — флуктуирующие величины с собственными квантовыми флуктуациями и флуктуациями, обусловленными диссипацией. Один из способов решения таких уравнений

заключается в использовании спектральных разложений и добавлении в уравнения ланжевовских сил, как это сделано в [30]. Ниже для анализа ДНЛ уравнения (5)–(8) заменяются уравнениями для средних и выполняется "расщепление" корреляций (аналог метода моментов статистической теории): моменты высокого порядка, т.е. средние от произведений флуктуирующих величин, заменяются моментами низкого порядка — произведениями средних.

3. Упрощённые уравнения, условия их применимости и условия генерации дипольного нанолазера

Предположим, что расстояние между частицами невелико, так что время запаздывания распространения ЭМП между частицами $\tau_r = n_2 r / c_0$ мало по сравнению с характерным временем изменения переменных и в (8) можно записать

$$\sigma \left(t - \frac{n_2 r}{c_0} \right) \approx \sigma(t) - \tau_r \frac{d\sigma}{dt}, \quad a \left(t - \frac{n_2 r}{c_0} \right) \approx a(t) - \tau_r \frac{da}{dt}. \quad (9)$$

При достаточно малых r , когда $\tau_r d\sigma/dt \ll \sigma(t)$, $\tau_r da/dt \ll a(t)$, в правых частях (9) можно пренебречь производными, и тогда система уравнений (5)–(7) примет вид

$$\dot{D} = 2i(\Omega_{\text{int}}^* a + \sigma - \Omega_{\text{int}} \sigma + a) - \tau^{-1}(D - D_0), \quad (10)$$

$$\dot{\sigma} = (i\delta_2 - \Gamma_2)\sigma + i\Omega_{\text{int}} a D, \quad (11)$$

$$\dot{a} = (i\delta - \Gamma_{\text{LPR}})a - i\bar{\Omega}_{\text{int}}^* \sigma, \quad (12)$$

где константа связи

$$\Omega_{\text{int}} = \xi(k_2 r) \frac{\mu_0 \mu}{\hbar r^3}, \quad \bar{\Omega}_{\text{int}}^* = \frac{1}{V} \int_V \Omega_{\text{int}}^* dV, \quad (13)$$

$\Omega_{\text{int}} = \Omega_{\text{int}}(r)$, $\bar{\Omega}_{\text{int}}^* = \bar{\Omega}_{\text{int}}^*(r)$, r — расстояние между двухуровневой системой и центром наночастицы. Для сферической наночастицы радиусом a в квазистатическом приближении, когда $k_2 a < k_2 r \ll 1$, оказывается, что $\bar{\Omega}_{\text{int}}^* = \Omega_{\text{int}}^*$. С другой стороны, вне квазистатического приближения и для малых частиц, когда $k_2 a \ll 1$ и $k_2 r \geq 1$, можно положить $\bar{\Omega}_{\text{int}} = \Omega_{\text{int}}$, по крайней мере с точностью $\sim a/r \ll 1$. Таким образом, по крайней мере для сферических малых наночастиц можно с хорошей точностью считать, что условие $\bar{\Omega}_{\text{int}} = \Omega_{\text{int}}$ всегда выполнено.

Уравнения ДНЛ (10)–(13) совпадают с уравнениями одномодового лазера, например (после переобозначений) с уравнениями (3.2) из [27]. Это означает, что при анализе ДНЛ можно непосредственно использовать ряд результатов теории лазеров, в том числе возможность когерентной генерации дипольного момента наночастицы, по аналогии с когерентной генерацией моды ЭМП в обычном лазере. Как и в обычном лазере, в ДНЛ может существовать порог генерации, хотя ДНЛ часто оказывается "беспороговым" (см. ниже), в отличие от обычного лазера, который является беспороговым только в специальных условиях [30].

Оценим, когда в (8) можно пренебречь запаздыванием. ДНЛ работает (выходит на стационарный режим и т.д.) с характерной скоростью $\sim \Gamma_{\text{LPR}}$, т.е. $\dot{\sigma}/\sigma \sim \dot{a}/a \sim \Gamma_{\text{LPR}}$. Добротность ЛПР $Q = \omega_{\text{LPR}} / (2\Gamma_{\text{LPR}})$. Учитывая эти соотношения, находим условия малости

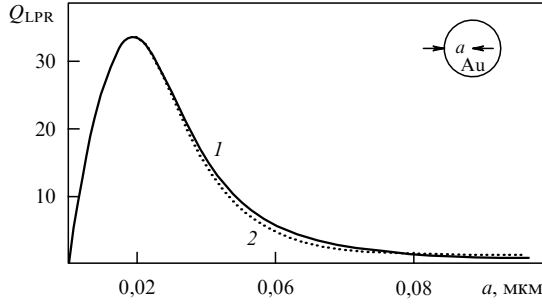


Рис. 2. Зависимость добротности ЛПР от радиуса сферической золотой наночастицы в воде. 1 — результат приближённого решения дисперсионного уравнения [3], 2 — точное решение этого уравнения.

времени запаздывания $\tau_r = n_2 r / c_0$:

$$\frac{n_2 r}{c_0} \Gamma_{\text{LPR}} = \frac{n_2 r}{c_0} \frac{\omega_{\text{LPR}}}{2Q} = \frac{k_2 r}{2Q} \ll 1, \text{ или } r \ll r_{\text{cr}} = \frac{2Q}{k_2}. \quad (14)$$

На рисунке 2 показана зависимость Q от радиуса a сферической золотой наночастицы в воде, $n_2 = 1,33$. Для максимума $Q = 33,8$ при $a = 19$ нм и $\lambda_{\text{LPR}} \equiv \omega_{\text{LPR}} / c_0 = 560$ нм получаем условие применимости уравнений (10)–(12) $r \ll r_{\text{cr}} = 4,53$ мкм. Таким образом, если атом расположен на расстоянии, например, в 40 нм от поверхности частицы (хотя такое большое расстояние и необязательно), то, пренебрегая малыми размерами атома, имеем $r = 0,06$ мкм $\ll r_{\text{cr}} = 4,53$ мкм. Даже при $Q_{\text{LPR}} = 10$ (что часто имеет место в эксперименте) $r = 0,06 \ll r_{\text{cr}} = 1,34$, т.е. существует запас в 1,5 порядка величины. Это означает, что запаздыванием в уравнениях (10)–(12) можно пренебречь.

Уравнения (10)–(12) могут быть обобщены для описания ДНЛ различных конструкций: например, когда имеется не одна, а $N > 1$ двухуровневых систем (атомов), каждая из которых находится на расстоянии r_m от центра наночастицы, как на рис. 1б. Отмечая индексом m переменные и параметры, относящиеся к соответствующему атому, и вводя переменные $\bar{D} = N^{-1} \sum_{m=1}^N D_m$ и $\Sigma = N^{-1} \sum_{m=1}^N \Omega_m^* \sigma_m$, усреднённые по ансамблю атомов, где Ω_m определяется (13) с $r = r_m$, можно получить вместо (10)–(12)

$$\dot{\bar{D}} = 2i(a^+ \Sigma - \Sigma^+ a) - \tau^{-1}(\bar{D} - D_0), \quad (15)$$

$$\dot{\Sigma} = [i(\delta_2 + \Omega_{dd} \bar{D}) - \Gamma_2] \Sigma + i|\bar{\Omega}|^2 a \bar{D}, \quad (16)$$

$$\dot{a} = (i\delta - \Gamma_{\text{LPR}})a - iN\Sigma. \quad (17)$$

Множитель N в последнем слагаемом правой части (17) указывает на вклад N атомов в генерацию дипольного момента наночастицы. Особенностью уравнения (16) является нелинейный сдвиг резонанса $\Omega_{dd} \bar{D}$, где величина Ω_{dd} , которая описывает эффекты "локального поля" в ДНЛ, связанные со взаимодействием между атомами через ЭМП [31], определяется усреднённым по всем атомам выражением (13), в котором r — расстояние между атомами. Можно показать, что Ω_{dd} — действительная величина. Учёт флуктуаций Ω_{dd} позволяет описать эффекты неоднородного уширения ("самоуширения") в ДНЛ со многими атомами.

4. Условия генерации дипольного нанолазера

Вернёмся к уравнениям (10)–(12). В выражение (13) для константы связи входят матричные элементы дипольных

моментов $\mu_{0,2}$, но удобнее использовать не $\mu_{0,2}$, а поляризуемости, расчёт которых для металлических наночастиц хорошо известен. В [10] показано, что $|\mu_0|^2 = \alpha_{0r} \hbar \Gamma_{\text{LPR}}$ и $|\mu_2|^2 = \alpha_{2r} \hbar \Gamma_2$, где α_{0r} , α_{2r} — резонансные поляризуемости соответственно наночастицы и двухуровневой системы. Отсюда и из (13) можно получить $|\Omega_{\text{int}}|^2 / (\Gamma_2 \Gamma) = |\xi|^2 |\alpha_{0r} \alpha_{2r}| / r^6$.

Нетривиальное стационарное решение уравнений (10)–(12) хорошо известно, в частности $D = D_{\text{th}} \equiv (1 + \delta^2 / \Gamma_{\text{LPR}}^2) \Gamma_2 \Gamma_{\text{LPR}} / |\Omega_{\text{int}}|^2$. Кроме нетривиального решения есть тривиальное стационарное решение $a = \sigma = 0$, $D = D_0$. При превышении накачки порогового значения $D_0 > D_{\text{th}}$ тривиальное решение становится неустойчивым, реализуется нетривиальное решение и возникает когерентная генерация дипольного момента. Поскольку населённость верхнего состояния двухуровневой системы не превышает единицы, необходимым условием генерации оказывается $D_{\text{th}} < 1$, что выполняется при достаточно сильном взаимодействии частиц. Для точного резонанса $\omega = \omega_2 = \omega_{\text{LPR}}$ необходимое условие генерации ДНЛ выражается как

$$D_{\text{th}}^{-1} = \frac{|\Omega_{\text{int}}|^2}{\Gamma_2 \Gamma_{\text{LPR}}} > 1$$

или

$$|\xi|^2 \frac{|\alpha_{0r} \alpha_{2r}|}{r^6} > 1, \quad (18)$$

т.е. двухуровневая система должна находиться достаточно близко к наночастице, так чтобы расстояние r между их центрами оказывалось $r < r_{\text{cr}} = |\xi|^{1/3} |\alpha_{0r} \alpha_{2r}|^{1/6}$.

Порог ДНЛ соответствует максимальному взаимодействию между частицами, т.е., согласно (18), максимуму величины $|\xi|^2 / r^6$ по θ_r , при фиксированном r . Анализ с использованием (8) показывает, что для сферической наночастицы значение $|\xi|^2 / r^6$ максимально, если $\cos \theta_r$ равен 1 или 0, т.е. если диполи направлены параллельно либо перпендикулярно отрезку, их соединяющему; это следует также из соображений симметрии. Максимум при $\cos \theta_r = 1$ соответствует $0 < k_2 r < \rho_{\text{bif}}$, в этом случае взаимодействие диполей через ближнее поле доминирует над их взаимодействием через дальнее, а максимум при $\cos \theta_r = 0$ соответствует $k_2 r > \rho_{\text{bif}}$ — преимущественному взаимодействию диполей через дальнее поле. В точке $k_2 r = \rho_{\text{bif}} = (5 + \sqrt{37})^{1/2} / \sqrt{2} \approx 2,35$ энергии взаимодействия диполей при $\cos \theta_r = 1$ и при $\cos \theta_r = 0$ одинаковы и $|\xi(\rho_{\text{bif}})|^2 / \rho_{\text{bif}}^6 \approx 0,154$. Таким образом, если изменять $k_2 r$, то при переходе через $k_2 r = \rho_{\text{bif}}$ происходит бифуркация: скачкообразное изменение направления поляризации диполей и диаграммы направленности излучения ДНЛ. Если использовать переменную $\rho = k_2 r$, то условие (18) генерации ДНЛ удобно записать в безразмерных величинах:

$$A \frac{|\xi(\rho)|^2}{\rho^6} > 1, \quad (19)$$

$$\xi(\rho) = \begin{cases} 2 \exp(i\rho)(i\rho - 1), & 0 < \rho \leq \rho_{\text{bif}}, \\ \exp(i\rho)(1 - \rho^2 + i\rho), & \rho_{\text{bif}} < \rho < \rho_{\text{cr}} = k_2 r_{\text{cr}}, \end{cases}$$

где $A = |\alpha_{0r} \alpha_{2r}| k_2^6$. На рисунке 3 показана зависимость $\rho_{\text{cr}}(A)$. Генерация возможна, если $0 < \rho < \rho_{\text{cr}}$. При этом, если $A > A_{\text{bif}}$, то возможны два режима генерации ДНЛ. Первый — в случае, когда $0 < \rho < \rho_{\text{bif}}$ и диполи парал-

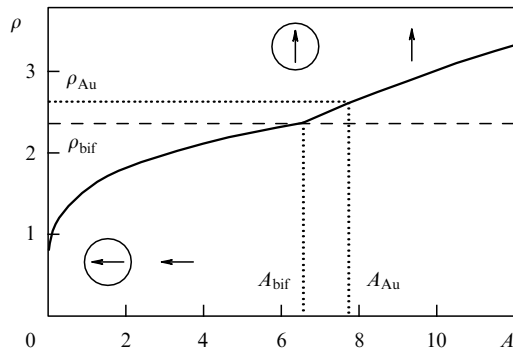


Рис. 3. Для данной величины A генерация ДНЛ возможна, если $\rho < \rho_{cr}(A)$, показанного сплошной кривой. Излом соответствует ρ_{bif} , при превышении которого направление диполей становится перпендикулярным прямой, их соединяющей. Величина A_{Au} и критическое значение ρ_{Au} соответствуют ДНЛ, изготовленному из сферической золотой наночастицы и квантовой точки в кремнии.

лельны отрезку, их соединяющему, и второй — когда $\rho_{bif} < \rho < \rho_{cr}$ и диполи перпендикулярны соединяющему их отрезку. Соответственно, диаграммы направленности излучения диполей в дальней зоне для этих режимов будут повернуты относительно друг друга — это свойство можно использовать для управления излучением ДНЛ. Несколько режимов генерации и соответствующие бифуркации могут существовать и для несферических наночастиц. Для $\rho_{bif} < \rho < \rho_{cr}$ имеется вырождение по направлениям диполей в плоскости, перпендикулярной отрезку, соединяющему центры частиц; в этом случае атом должен описываться не как двухуровневая, а как трёхуровневая система.

Оценим величину A для сферической золотой наночастицы радиусом 7 нм. Допустим, что двухуровневая система (молекула) находится на диэлектрической оболочке наночастицы в воде; показатель преломления оболочки не сильно отличается от показателя преломления воды $n_2 = 1,33$; эти условия близки к условиям эксперимента [25]. Используем параметры двухуровневой системы, как в [10], и те же параметры и формулы для вычисления диэлектрической функции золота и поляризуемости золотой наночастицы, что и в [34]. В данном случае $\lambda_{LPR} = 525$ нм (в вакууме), $A = 6,28 \times 10^{-4}$, что соответствует $\rho_{cr} = 0,378$. Максимальное расстояние между центрами частиц $r_{cr} = \rho_{cr} \lambda_{LPR} / (2\pi n_2) = 24$ нм. В [25] при $\lambda_{LPR} = 520$ нм расстояние между оболочкой, окружающей золотую сферическую частицу радиусом 7 нм, и центром этой частицы составляло 22 нм, т.е. оценки подтверждают возможность генерации в [25].

В качестве второго примера рассмотрим ДНЛ из золотой (или серебряной) сферической наночастицы радиусом 10 нм и квантовой точки в кремнии. Используя диэлектрическую функцию кремния [35], находим $\lambda_{LPR} = 876$ (804) нм, $A = 7,8$ (6,7), и диполи могут располагаться на расстоянии $r < r_{cr} = 100$ (83) нм между их центрами. Соответствующие точки для золотой наночастицы отмечены на рис. 3; для этой частицы $A = A_{Au} > A_{bif} \approx 7$, и, следовательно, при генерации диполи могут быть направлены как вдоль, так и поперёк прямой, их соединяющей. Эти оценки показывают, что необходимое условие генерации ДНЛ может быть выполнено в реальных системах.

5. Учёт некогерентной генерации дипольного нанолазера

В этом разделе, следуя [14], рассмотрим уравнения ДНЛ в следующем приближении метода моментов, учитывая средние от квадратичных величин, что позволит описать некогерентную генерацию дипольного момента — аналог некогерентной, в том числе подпороговой, генерации в обычном лазере [29]. В условиях некогерентной генерации средние значения дипольных моментов $\langle \sigma \rangle = \langle a \rangle = 0$, но соответствующие энергии, или квадраты модулей дипольных моментов, $\langle \sigma^+ \sigma \rangle \neq 0$ и $\langle a^+ a \rangle \neq 0$.

Перейдём в уравнениях (10)–(12) от операторов a , σ к их бинарным комбинациям: оператору числа плазмонов $n_0 = a^+ a$ и $G = i\Gamma_{tot}^{-1}(\Omega_{int}\sigma^+ a - \Omega_{int}^* a^+ \sigma)$, где $\Gamma_{tot} = \Gamma_{LPR} + \Gamma_2$. Вместо D удобнее использовать оператор n_2 населённости верхнего уровня двухуровневой системы, $D = 2(n_2 - 1/2)$. Рассмотрим резонансный (полагая $\delta_0, \delta \ll \Gamma_{LPR}, \Gamma_2$), но более общий, чем в [14], случай, предположив, что имеется N атомов, находящихся на одинаковом расстоянии от металлической наночастицы, например, на диэлектрической оболочке (рис. 16). Дифференцируя произведения операторов и используя (10)–(12), можно найти

$$\dot{G} = -2\Gamma_{tot}G + 2g_{pl}N \left[n_0 \left(n_2 - \frac{1}{2} \right) + \frac{n_2}{2N} \right], \quad (20)$$

$$\dot{n}_0 = -2\Gamma_{LPR}n_0 + \Gamma_{tot}G, \quad (21)$$

$$\dot{n}_2 = -\Gamma_{tot}G - \frac{n_2}{\tau} + j, \quad (22)$$

здесь j — скорость накачки отдельного атома, $g_{pl} = 2|\Omega_{int}|^2/\Gamma_{tot} \equiv 4\Gamma_2\Gamma_{LPR}/(D_{th}\Gamma_{tot})$, n_0 — число плазмонов на атом, а полное число генерируемых плазмонов Nn_0 . В (20)–(22) переменные представляют собой средние от операторов; корреляциями пренебрегается, т.е. средние $\langle n_0 n_2 \rangle \approx \langle n_0 \rangle \langle n_2 \rangle$. При выводе (20)–(22) использовалось квантово-механическое тождество $\sigma^+ \sigma = n_2$ [36], вследствие которого в квадратных скобках в правой части (20) возникло слагаемое $n_2/(2N)$, ответственное за некогерентную генерацию дипольного момента наночастицы. Это слагаемое, пропорциональное n_2 , даёт вклад в генерацию плазмонов независимо от существования инверсии населённостей, т.е. чем больше N , тем меньше это слагаемое.

На рисунке 4 показаны зависимости числа плазмонов, генерируемых ДНЛ с $N = 100$ атомами, от скорости накачки, выраженной в единицах Γ_{LPR} , если $D_{th} = 0,9$, при том же Γ_2 , что и в [10], т.е. $\Gamma_2 = \Gamma_{2R} + \Gamma_{2NR}$, где радиационная ширина линии двухуровневой системы (квантовой точки) $\Gamma_{2R} \equiv 1/\tau = 1$ нс, нерадиационная ширина линии $\hbar\Gamma_{2NR} = \bar{e}\gamma_{ac}T$, \bar{e} — заряд электрона, T — температура [K], $\gamma_{ac} = 0,5 \times 10^{-6}$ эВ K⁻¹; $T = 300$ K и $\Gamma_{LPR} = 300\Gamma_{2R}$ (кривая 1), $\Gamma_{LPR} = 10\Gamma_{2R}$ (кривая 2) и $\Gamma_{LPR} = 3\Gamma_{2R}$ (кривая 3).

Если рассматривать порог лазерной генерации как резкое ускорение возрастания числа плазмонов с увеличением тока накачки (порог по числу плазмонов), то такой порог оказывается заметным только в случае кривой 3, когда добротность ЛПП весьма высока. Случаи кривых 1 и 2 соответствуют "беспороговой" генерации. Но не менее, чем существование или отсутствие порога по числу плазмонов, важны условия сужения линии генерации до величины, меньшей Γ_{LPR} , которые пока не исследованы, но могут быть найдены с использованием

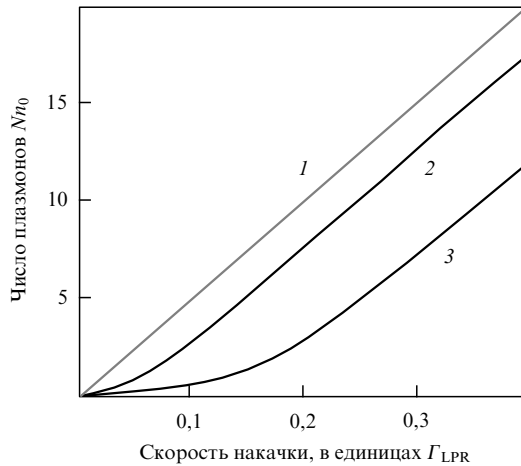


Рис. 4. Зависимости числа плазмонов, генерируемых ДНЛ, от скорости накачки каждого из $N = 100$ атомов при условии, что инверсия населённостей равна 0,9 и ширина линии ЛПП составляет 300 (кривая 1), 30 (кривая 2) и 3 (кривая 3) радиационные ширины линии атомов. Пороговый характер генерации заметен в случае кривой 3.

подхода [30]. Учитывая результаты [30], можно предположить, что необходимым условием сужения линии останется (18), даже для "беспороговых" ДНЛ, которые описываются кривыми типа 1 и 2 на рис. 4. Существенно, что (20)–(22) предсказывают гораздо более высокую скорость накачки вблизи порога: $j \sim \Gamma_{LPR}$ вместо $j \sim 1/\tau \ll \Gamma_{LPR}$ в случае уравнений (10)–(12), которые не учитывают потери энергии на некогерентную генерацию ниже порога.

В условиях $N \sim 1$ и $\Gamma_{LPR} \geq \Gamma_2$ (низкодобротный ЛПП) $\Gamma_{tot} \gg 1/\tau$, число плазмонов $n_0 \ll 1$ и не слишком большой скорости накачки, $j \ll \Gamma_{LPR}$, в (20) можно пренебречь слагаемым $\sim n_0$ и адиабатически исключить G из (20)–(22), положив там $\dot{G} = 0$. После этого остаётся единственное уравнение: $\dot{n}_2 = -(\tau^{-1} + g_{pl}/2)n_2 + j$. Из него видно, что из-за наличия металлической наночастицы существенно уменьшается время жизни электрона в верхнем состоянии двухуровневой системы: в обычных условиях $g_{pl} \sim \Gamma_{LPR} \gg \tau^{-1}$. Этот факт можно использовать для создания широкополосных оптических модуляторов с металлическими наночастицами [16].

В условиях $g_{pl} \sim \Gamma_{LPR} \gg \tau^{-1}$ после адиабатического исключения G в уравнении для n_2 можно пренебречь слагаемым n_2/τ . Это означает, что атом излучает преимущественно в "дипольную" моду наночастицы и пренебрежимо мало — в её другие моды с частотами, отличными от частоты "дипольной" моды. Таким образом, число мод, в которые возможно спонтанное излучение атома, ограничено, в этом смысле наночастица похожа на фотонный кристалл. При этом стационарное число плазмонов $n_0 = j/(2\Gamma_{LPR})$ линейно возрастает с увеличением тока накачки, порога генерации по числу плазмонов нет, но ширина линии ДНЛ может быть уменьшена до значений, меньших Γ_{LPR} , как и у беспорогового лазера [30]. Следует отметить, что хотя в металлической наночастице есть поглощение, число фотонов, поступающих от двухуровневой системы и переизлучаемых частицей, будет не слишком мало по сравнению с числом фотонов, излучаемых двухуровневой системой без наночастицы, при одинаковой скорости накачки в обоих случаях. Действительно, величины

сечений поглощения и рассеяния металлической наночастицы в условиях ЛПП могут относиться как 1:2 [4], т.е. только каждый третий фотон, поступающий от атома, будет участвовать в нагреве наночастицы, а остальные будут уходить в её дипольное излучение. При этом скорость переизлучения будет примерно в $\tau\Gamma_{LPR}$ (т.е. на порядок и более) раз выше скорости излучения атома в отсутствие наночастицы. Таким образом, система атомов вблизи наночастицы — весьма эффективное, с точки зрения преобразования мощного тока накачки, наноразмерное светоизлучающее устройство.

6. Заключение

Дипольный нанолазер — интересная как по своим фундаментальным свойствам, так и по возможным практическим приложениям система квантовой электроники. Уникальность ДНЛ состоит, в частности, в том, что он находится "на границе" области, в которой существенны квантовые эффекты, такие как спонтанное излучение в моду генерации, и классические нелинейные эффекты, такие как возбуждение автоколебаний и т.п. Выше невозможно было рассмотреть все квантовые эффекты, связанные с ДНЛ, например, сверхизлучение в ансамблях ДНЛ, сужение линии генерации при переходе через порог и др. Не рассматривались и многие классические нелинейные эффекты, такие как, например, бистабильность ДНЛ во внешнем резонансном поле [14, 15]. Представляет интерес анализ ДНЛ с несколькими атомами — как логической ячейки (qbit) для квантового компьютера, например типа "управляемое НЕ" [37]. ДНЛ при генерации ниже пороговой могут применяться как эффективные наноразмерные светоизлучатели. Для увеличения эффективности солнечных батарей и фотоприёмников можно использовать прибор, "обратный" ДНЛ: когда наночастица — антенна оптического диапазона — принимает фотон и передаёт его через ближнее поле, например, квантовой точке, вырабатывающей фототок. Исследованиям повышения эффективности солнечных элементов с помощью металлических наночастиц посвящена обширная литература [7], фотопреобразователи на квантовых точках даже без наночастиц считаются весьма перспективными [38], но ДНЛ-фотоприёмники пока не рассматривались. Трудно заранее предвидеть все перспективные применения ДНЛ.

Возможны различные схемы практической реализации ДНЛ: в частности, в виде металлической наночастицы в диэлектрической оболочке, на поверхности которой имеются активные атомы или молекулы, например красителя, адсорбированные из раствора, в котором находятся наночастицы (рис. 16). ДНЛ по такой схеме реализован в эксперименте [25]. Расчёт ДНЛ такого типа может быть осуществлён также в рамках модели наночастицы "ядро-оболочки". Оболочки рассматриваются как сплошные среды с соответствующими (комплексными) показателями преломления. Для случая сферических наночастиц расчёт может быть проведён с использованием известных мод сферического резонатора [3] и без привлечения квазиклассического приближения. Возможно и использование модели "наночастица-двухуровневая система", наподобие представленной выше, с несколькими излучающими атомами (молекулами). Другая схема ДНЛ: наночастица-антенна помещается на поверхность, например, полупроводника, под которой на небольшой (до нескольких десятков нанометров)

глубине находится активный слой — p - n -переход или квантовая яма, или слой квантовых точек. Имеются примеры практической реализации подобных систем, хорошо известно увеличение в них электро- и фотолюминесценции за счёт металлических наночастиц [23, 24]. Теоретическое описание ДНЛ подобного типа должно учитывать плоские границы сред и электродинамику диполей в стратифицированных средах [39]. Можно представить и комбинации различных схем ДНЛ, например, из металлических наночастиц с активными оболочками, находящихся на поверхности полупроводников.

Основанная на достаточно простых уравнениях теория ДНЛ, которая последовательно развивается, способна описать сложные схемы ДНЛ, предсказать новые эффекты и помочь в планировании эксперимента. Используя результаты теоретической квантовой электроники, плазмоники и теории взаимодействия излучения с веществом, можно сделать аналитические оценки, а затем, применяя численные методы, провести детальное моделирование экспериментов — как только они будут запланированы в России.

Список литературы

- Mie G *Ann. Physik* **330** 377 (1908)
- Maxwell Garnett J C *Philos. Trans. R. Soc. London A* **203** 385 (1904)
- Stratton J A *Electromagnetic Theory* (New York: McGraw-Hill, 1941) [Страттон Дж А *Теория электромагнетизма* (М. – Л.: Гостехиздат, 1948)]
- Климов В В *Наноплазмоника* (М.: Физматлит, 2009)
- Orrit M *Nature Phys.* **3** 755 (2007)
- Akimov A V et al. *Nature* **450** 402 (2007)
- Catchpole K R, Polman A *Opt. Express* **16** 21793 (2008)
- Mühlschlegel P et al. *Science* **308** 1607 (2005)
- Займидорога О А, Проценко И Е, Самойлов В Н, Патент РФ RU 2249278 C2 от 21.04.2003
- Protsenko I E et al. *Phys. Rev. A* **73** 069902(E) (2006)
- Protsenko I E, O'Reilly E P *Phys. Rev. A* **74** 033815 (2006)
- Кротова К Е, Проценко И Е, в сб. *Научная сессия МИФИ. Сб. трудов Т. 4* (М.: МИФИ, 2007) с. 47
- Кротова К Е, Проценко И Е, в сб. *Научная сессия МИФИ. Сб. трудов Т. 2* (М.: МИФИ, 2008) с. 61
- Protsenko I E et al. *Proc. SPIE* **6889** 68890U (2008)
- Protsenko I E et al. *J. Phys. Conf. Ser.* **107** 012010 (2008)
- Protsenko I, Krotova K, in *Physics, Chemistry and Application of Nanostructures. Proc. of the Intern. Conf. on Nanomeeting 2009, Minsk, Belarus, 26–29 May 2009* (Eds V E Borisenko, S V Garonenko, V S Gurin) (Singapore: World Scientific, 2009) p. 561
- Кротова К Е, Проценко И Е, в сб. *Труды научной сессии МИФИ-2010 Т. 4* (М.: НИЯУ МИФИ, 2010) с. 189
- Andrianov E S et al. *Opt. Lett.* **36** 4302 (2011)
- Lisyansky A A et al. *Phys. Rev. B* **84** 153409 (2011)
- Stockman M, Bergman D, Patent US2009236539 (A1) 2009-09-24 appl on Jan 3, 2003
- Bergman D J, Stockman M I *Phys. Rev. Lett.* **90** 027402 (2003)
- Lawandy N M *Appl. Phys. Lett.* **85** 5040 (2004)
- Pillai S et al. *Appl. Phys. Lett.* **88** 161102 (2006)
- Biteen J S et al. *Appl. Phys. Lett.* **88** 131109 (2006)
- Noginov M A et al. *Nature* **460** 1110 (2009)
- Oulton R F et al. *Nature Lett.* **461** 629 (2009)
- Ханин Я И *Основы динамики лазеров* (М.: Физматлит, 1999)
- Ораевский А Н *УФН* **171** 681 (2001) [Oraevskii A N *Phys. Usp.* **44** 647 (2001)]
- Siegman A E *Lasers* (Mill Valley, Calif.: Univ. Sci. Books, 1986)
- Protsenko I E et al. *Phys. Rev. A* **59** 1667 (1999)
- Girard C *Rep. Prog. Phys.* **68** 1883 (2005)
- Allen L, Eberly J H *Optical Resonance and Two-Level Atoms* (New York: Wiley, 1975) [Аллен Л, Эберли Дж *Оптический резонанс и двухуровневые атомы* (М.: Мир, 1978)]
- Ландау Л Д, Лифшиц Е М *Теория поля* (М.: Наука, 1988) [Landau L D, Lifshitz E M *The Classical Theory of Fields* (Oxford: Pergamon Press, 1980)]
- Проценко И Е, Усков А В *УФН* **182** 543 (2012) [Protsenko I E, Uskov A V *Phys. Usp.* **55** 508 (2012)]
- Adachi S, Mori H, Ozaki S *Phys. Rev. B* **66** 153201 (2002)
- Protsenko I E, Lugiato L A *Quantum Semiclass. Opt.* **8** 1067 (1996)
- Protsenko I E et al. *Phys. Rev. A* **66** 062306 (2002)
- Nozik A J *Physica E* **14** 115 (2002)
- Tomaš M S *Phys. Rev. A* **51** 2545 (1995)

PACS numbers: 42.50.Nn, 73.20.Mf, 78.67.Pt, 81.05.Xj
DOI: 10.3367/UFNr.0182.201210j.1122

Квантовая плазмоника метаматериалов: перспективы компенсации потерь при помощи спазеров

А.П. Виноградов, Е.С. Андрианов, А.А. Пухов, А.В. Дорофеев, А.А. Лисянский

1. Введение

В последнее время получила развитие новая область оптики — квантовая плазмоника, сочетающая в себе преимущества плазмоники и квантовой электроники [1–25]. Хотя плазмоника имеет дело с волновыми явлениями, она оперирует с масштабами, много меньшими длины волны в вакууме. Это наделяет плазмонику многими чертами ближнепольной оптики и делает её востребованной современными нанотехнологиями. Здесь можно прежде всего упомянуть SERS (Surface Enhanced Raman Scattering), SPASER (Surface Plasmon Amplification by Stimulated Emission of Radiation), наноразмерные источники света [26–30] и многочисленные устройства на основе метаматериалов [17, 31, 32]: концентраторы энергии и передающие линии, имеющие размеры порядка нескольких десятков нанометров, суперлинза с разрешением, превосходящим дифракционный предел, маскировка (cloaking), гиперлинзы [33–40] и т.п. Малые размеры таких устройств вносят в их динамику квантовые эффекты.

Так как в основе принципа действия метаматериалов лежит плазмонный резонанс металлических наночастиц (НЧ), в искусственных метаматериалах наблюдаются довольно высокие потери. Наличие потерь в приборах на основе метаматериалов вызывает внутри них перенос энергии, который осуществляется ближними полями. Необходимым и достаточным условием переноса энергии эванесцентными волнами является появление разницы фаз "интерферирующих" эванесцентных гармоник [41]. Возникающая дефазировка гармоник, создающих идеальное изображение, проявляется в их деструктивной интерференции и разрушении идеального изображения [42]. Для компенсации потерь было предложено использовать в искусственных метаматериалах активные (усиливающие) среды [43–51]. Однако из вышесказанного следует, что не только диссипация, но и усиление в среде

А.П. Виноградов, Е.С. Андрианов, А.А. Пухов, А.В. Дорофеев. Институт теоретической и прикладной электродинамики РАН, Москва, РФ. E-mail: a-vinogr@yandex.ru
А.А. Лисянский. Department of Physics, Queens College of the City University of New York, USA

приводит к разрушению идеального изображения. Нужна как можно более точная компенсация потерь [43, 52, 53].

Использование активных сред в метаматериалах неизбежно ведёт к образованию внутри них нанолазеров. К числу нанолазеров можно отнести дипольный нанолазер [8, 10], спазер [11, 54], нанолазер на магнитной моде [48, 49]. С точки зрения компенсации потерь в метаматериалах наиболее перспективным базовым элементом являются спазеры [54], об экспериментальной реализации которых сообщается в работе [55]. Схематически спазер представляет собой квантово-плазмонный прибор, состоящий из инверсно возбуждённых двухуровневых квантовых точек (КТ) (Two-Level tunneling System — TLS), окружающих плазмонные НЧ (более реалистичное рассмотрение четырёхуровневой системы не привносит качественно новых свойств (см. [50, 56, 57])). Принцип действия спазера аналогичен принципу действия лазера — это усиление, обеспеченное инверсной населённостью, в сочетании с обратной связью, создаваемой индуцированным излучением квантовой системы. Условие для индуцированного излучения инверсной квантовой системы в поле ранее высвеченной этой же системой волны обеспечивается помещением квантовой системы в резонатор, локализуемый генерируемую моду. В спазере роль фотонов играют поверхностные плазмоны (ПП) НЧ. Локализация плазмонов на НЧ [11, 49, 54] создаёт условия для реализации обратной связи. Иными словами, в спазере происходит генерация и усиление ближних полей НЧ. Усиление ПП происходит за счёт безызлучательной передачи энергии от КТ. В основе процесса лежит диполь-дипольное (или любое иное ближнепольное [58]) взаимодействие КТ и плазмонной НЧ. Этот механизм можно рассматривать как основной, потому что вероятность безрадиационного возбуждения плазмона в $(kr_{\text{NP-TLS}})^{-3}$ раз больше вероятности радиационного испускания фотона [15] ($r_{\text{NP-TLS}}$ — расстояние между центрами НЧ и КТ, $k = 2\pi/\lambda$, где λ — длина волны в вакууме). Таким образом, эффективность передачи энергии от КТ к НЧ достигается благодаря малому расстоянию между ними, несмотря на то что добротность плазмонного резонанса достаточно низка¹. Вследствие высокой эффективности этого процесса внешняя оптическая волна, распространяющаяся по метаматериалу, взаимодействует не отдельно с усиливающей средой и отдельно с плазмонными частицами, а с целыми спазерами.

Как и лазер, спазер является автоколебательной системой. Его дипольный момент совершает автономные колебания, частота и амплитуда которых определяется балансом между накачкой и диссипацией. Внешнее поле может лишь синхронизировать работу спазера, т.е. заставить дипольный момент спазера осциллировать с частотой внешнего поля. Слабая зависимость амплитуды этих колебаний от внешнего поля создаёт трудности в использовании спазера как наноразмерного прибора, но эти трудности не являются непреодолимыми. В частности, в работе [12] предложено использовать спазер, работающий в неустойчивом режиме, в качестве

усилителя. Таким образом, физика спазера достаточно интересна для того, чтобы являться самостоятельным объектом исследований. Физика спазера образует новый раздел оптики — квантовую плазмонику. Однако для развития электродинамики метаматериалов, естественно, представляет интерес рассмотрение не единичного спазера, а целых структур, составленных из упорядоченных линеек или решёток спазеров. В этом случае коллективное взаимодействие между спазерами может существенно изменять условия генерации, свойства автономных автоколебаний спазеров и даже приводить к новым явлениям или неустойчивостям в этих структурах. В связи с этим наряду с плазмонами, локализованными на плазмонных частицах, особый интерес представляют плазмоны, распространяющиеся вдоль одномерных объектов, таких как проволока, цепочка наночастиц или канавка в металле [61–64]. Наличие усиливающей среды приводит к усилению одномерных плазмонов [4, 23, 44, 65]. Хотя имеющиеся сегодня теоретические оценки и экспериментальные разработки в области квантовой плазмоники основываются на простейших моделях, они указывают на перспективность применения спазеров при создании элементной базы оптических информационных устройств и оптических компьютеров.

В данном сообщении мы рассмотрим как индивидуальное, так и коллективное поведение спазеров при генерации, превышающей пороговую.

2. Уравнения "движения" спазера

Так как длина волны ПП λ_{SP} много меньше длины волны излучения в вакууме λ [15, 16], пространственные производные в уравнениях Максвелла много больше временных. Пренебрежение последними позволяет описывать поле плазмона в квазистатическом приближении [66, 67]. Оказывается, это справедливо и при работе спазера даже в режиме излучающей наноантенны, т.е. когда джоулевы потери в наночастице меньше радиационных потерь. Рассмотрение мод малой сферической НЧ радиусом $r_{\text{NP}} \ll \lambda$ показывает, что частота плазмонного резонанса совпадает с частотой, при которой НЧ является полуволновой антенной (резонатором): на диаметре сферы укладывается половина плазмонной длины волны [66].

Ниже мы рассмотрим возбуждение только основной, дипольной, моды ПП с частотой ω_{SP} . Для серебряной НЧ, окружённой оксидом кремния (SiO_2), значения диэлектрических проницаемостей хорошо известны [68]. Полагая радиус НЧ $r_{\text{NP}} \sim r \sim 10$ нм, можно оценить величину дипольного момента НЧ вблизи плазмонного резонанса: $\mu_{\text{NP}} \sim 200$ Д. Дипольный момент типичной КТ размером $r_{\text{TLS}} \sim 10$ нм составляет $\mu_{\text{TLS}} \approx 20$ Д [69]. Взаимодействие НЧ и КТ является диполь-дипольным: $V = \hbar\Omega_{\text{R}} \sim \mu_{\text{NP}} \mu_{\text{TLS}}/r^3$, а константа связи этого взаимодействия (частота Раби Ω_{R}) оказывается на два порядка меньше частоты генерации [22]. Это позволяет нам ниже использовать приближение медленно меняющихся амплитуд.

На частоте плазмонного резонанса поляризация НЧ описывается уравнением осциллятора с собственной частотой, равной частоте плазмонного резонанса:

$$\ddot{\mathbf{d}}_{\text{NP}} + \omega_{\text{SP}}^2 \mathbf{d}_{\text{NP}} = 0. \quad (1)$$

¹ Заметим, что, поскольку ниже мы пренебрегаем процессами испускания фотона, эффект Парселла [59, 60] не играет заметной роли и его учитывать не надо.

Квантование этого осциллятора осуществляется стандартным образом [59, 70]: вводятся бозе-операторы рождения $\hat{a}^\dagger(t)$ и уничтожения $\hat{a}(t)$ дипольного ПП, возбуждённого в НЧ, удовлетворяющие коммутационному соотношению $[\hat{a}(t), \hat{a}^\dagger(t)] = 1$, а гамильтониан выражается как

$$\hat{H}_{\text{SP}} = \hbar\omega_{\text{SP}} \hat{a}^\dagger \hat{a}. \quad (2)$$

В случае сферической НЧ электрическое поле дипольной моды является однородным внутри НЧ, $\mathbf{E}_1 = -\boldsymbol{\mu}_1/r_{\text{NP}}^3$, а снаружи имеет вид $\mathbf{E}_1 = -\boldsymbol{\mu}_1/r^3 + 3(\boldsymbol{\mu}_1 \mathbf{r})\mathbf{r}/r^5$. Вектор единичного дипольного момента $\boldsymbol{\mu}_1$ — это размерная величина, поэтому ниже мы будем явно указывать множитель $|\boldsymbol{\mu}_1|$.

Энергия одного плазмона $\hbar\omega_{\text{SP}}$ выражается в виде [71]

$$W_1 = \frac{1}{8\pi} \int_{V_{\text{NP}}} \omega \frac{\partial \text{Re } \varepsilon}{\partial \omega} \Big|_{\omega_{\text{SP}}} E_1 E_1^* dV_{\text{NP}} = \frac{|\boldsymbol{\mu}_1|^2}{6r_{\text{NP}}^3} \omega \frac{\partial \text{Re } \varepsilon}{\partial \omega} \Big|_{\omega_{\text{SP}}}, \quad (3)$$

где V_{NP} — объём НЧ. Отсюда поле, создаваемое НЧ,

$$\mathbf{E} = \sqrt{\frac{3\hbar r_{\text{NP}}^3}{|\boldsymbol{\mu}_1|^2 \partial \text{Re } \varepsilon / \partial \omega}} \mathbf{E}_1(\mathbf{r})(\hat{a} + \hat{a}^\dagger),$$

дипольный момент НЧ соответственно $\hat{\mathbf{d}}_{\text{NP}} = \boldsymbol{\mu}_{\text{NP}}(\hat{a} + \hat{a}^\dagger)$, где

$$\boldsymbol{\mu}_{\text{NP}} = \sqrt{\frac{3\hbar r_{\text{NP}}^3}{\partial \text{Re } \varepsilon_{\text{NP}} / \partial \omega}} \frac{\boldsymbol{\mu}_1}{|\boldsymbol{\mu}_1|^2}.$$

Это согласуется [20, 21] с "классическим" определением дипольного момента [72]

$$\mathbf{d}_{\text{NP}} = \frac{\varepsilon_{\text{NP}}(\omega) - \varepsilon_{\text{M}}}{\varepsilon_{\text{NP}}(\omega) + 2\varepsilon_{\text{M}}} \mathbf{E}_1 r_{\text{NP}}^3.$$

Для описания квантовой динамики НЧ и двухуровневой КТ спазера можно использовать модельный гамильтониан вида [8, 54, 73]

$$\hat{H} = \hat{H}_{\text{SP}} + \hat{H}_{\text{TLS}} + \hat{V} + \hat{I}, \quad (4a)$$

где \hat{H}_{TLS} — гамильтониан двухуровневой КТ [16, 54, 74],

$$\hat{H}_{\text{TLS}} = \hbar\omega_{\text{TLS}} \hat{\sigma}^\dagger \hat{\sigma}, \quad (4б)$$

оператор $\hat{V} = -\hat{\mathbf{d}}_{\text{NP}} \hat{\mathbf{E}}_{\text{TLS}}$ определяет взаимодействие между двухуровневой КТ и НЧ, а оператор \hat{I} описывает эффекты релаксации и накачки [74]. Оператор дипольного момента КТ $\hat{\mathbf{d}}_{\text{TLS}} = \boldsymbol{\mu}_{\text{TLS}}(\hat{\sigma}(t) + \hat{\sigma}^\dagger(t))$, где $\hat{\sigma} = |g\rangle\langle e|$ — оператор перехода между возбуждённым $|e\rangle$ и основным $|g\rangle$ состояниями КТ, $\boldsymbol{\mu}_{\text{TLS}} = \langle e|\hat{\mathbf{d}}_{\text{TLS}}|g\rangle$ — дипольный момент перехода КТ. Таким образом,

$$\hat{V} = \hbar\Omega_{\text{R}}(\hat{a}^\dagger + \hat{a})(\hat{\sigma}^\dagger + \hat{\sigma}),$$

где частота Раби

$$\Omega_{\text{R}} = \frac{\boldsymbol{\mu}_{\text{NP}} \boldsymbol{\mu}_{\text{TLS}} - 3(\boldsymbol{\mu}_{\text{TLS}} \mathbf{e}_r)(\boldsymbol{\mu}_{\text{NP}} \mathbf{e}_r)}{\hbar r^3},$$

\mathbf{e}_r — единичный вектор, $\mathbf{e}_r = \mathbf{r}/r$.

Полагая, что частота перехода КТ близка к частоте ПП, $\omega_{\text{SP}} \approx \omega_{\text{TLS}}$, будем искать решения в виде $\hat{a}(t) \equiv \hat{a}(t) \exp(-i\omega t)$ и $\hat{\sigma}(t) \equiv \hat{\sigma}(t) \exp(-i\omega t)$, где $\hat{a}(t)$, $\hat{\sigma}(t)$ — медленно меняющиеся амплитуды. Тогда, пренебрегая быстро осциллирующими членами $\sim \exp(\pm 2i\omega t)$ (приближение вращающейся волны [74]), оператор взаимодействия \hat{V} можно записать в виде гамильтониана Джайнса – Каммингса [70]:

$$\hat{V} = \hbar\Omega_{\text{R}}(\hat{a}^\dagger \hat{\sigma} + \hat{\sigma}^\dagger \hat{a}). \quad (4в)$$

Исходя из гамильтониана (4), используя стандартные коммутационные соотношения $[\hat{a}, \hat{a}^\dagger] = 1$, $[\hat{\sigma}^\dagger, \hat{\sigma}] = \hat{D}$ для операторов $\hat{a}(t)$, $\hat{\sigma}(t)$ и оператора инверсии населённости $\hat{D}(t)$, получаем следующие уравнения движения Гейзенберга [8, 75]:

$$\dot{\hat{D}} = 2i\Omega_{\text{R}}(\hat{a}^\dagger \hat{\sigma} - \hat{\sigma}^\dagger \hat{a}) - \frac{\hat{D} - \hat{D}_0}{\tau_{\text{D}}}, \quad (5)$$

$$\dot{\hat{\sigma}} = \left(i\delta - \frac{1}{\tau_{\sigma}}\right)\hat{\sigma} + i\Omega_{\text{R}}\hat{a}\hat{D}, \quad (6)$$

$$\dot{\hat{a}} = \left(i\Delta - \frac{1}{\tau_a}\right)\hat{a} - i\Omega_{\text{R}}\hat{\sigma}, \quad (7)$$

где $\delta = \omega - \omega_{\text{TLS}}$, $\Delta = \omega - \omega_{\text{SP}}$ — расстройки частот. Оператор инверсии населённости КТ $\hat{D}(t) = \hat{n}_e(t) - \hat{n}_g(t)$, где $\hat{n}_e = |e\rangle\langle e|$, $\hat{n}_g = |g\rangle\langle g|$ — операторы населённости верхнего и нижнего уровней КТ, $\hat{n}_e + \hat{n}_g = 1$. Отметим, что оператор инверсии населённости $\hat{D}(t)$ в силу своего определения является "медленным". Вклад эффектов релаксации и накачки, обозначенный в (4а) оператором \hat{I} , описывается в уравнениях (5)–(7) слагаемыми, пропорциональными скоростям релаксации τ_{D}^{-1} , τ_{σ}^{-1} и τ_a^{-1} , а оператор \hat{D}_0 описывает инверсную населённость, созданную в КТ сторонней накачкой [70, 74].

Сильная диссипация в НЧ делает эту схему квантования приближённой и одновременно позволяет пренебречь квантовыми корреляциями [8, 10]. Это даёт нам возможность рассматривать $\hat{D}(t)$, $\hat{\sigma}(t)$, $\hat{a}(t)$ как комплексные величины, заменяя эрмитово сопряжение комплексным [8, 10, 12, 43]. При этом величина $D(t)$, имеющая смысл разности населённости верхнего и нижнего уровней, будет принимать только вещественные значения, поскольку соответствующий оператор эрмитов. Величины $\sigma(t)$ и $a(t)$ имеют смысл безразмерных комплексных амплитуд колебаний дипольных моментов КТ и ПП соответственно. Таким образом, уравнения спазера (5)–(7) в этом приближении представляют собой одно-модовые оптические уравнения Блоха [74].

3. Стационарный режим генерации спазера

Система уравнений (5)–(7), кроме тривиального решения $a = 0$, $\sigma = 0$, $D = D_0$, устойчивого ниже порога генерации, имеет также нетривиальное стационарное решение:

$$a = \frac{\exp(i\varphi)}{2} \sqrt{\frac{(D_0 - D_{\text{th}})\tau_a}{\tau_{\text{D}}}}, \quad (8a)$$

$$\sigma = \frac{\exp(i\psi)}{2} \sqrt{\frac{(D_0 - D_{\text{th}})(\delta_{\text{SP}}^2 + \tau_a^{-2})\tau_a}{\Omega_{\text{R}}^2 \tau_{\text{D}}}}, \quad (8б)$$

$$D = D_{\text{th}}, \quad (8в)$$

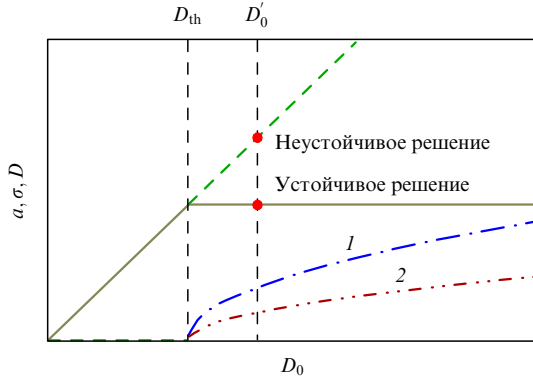


Рис. 1. Устойчивые стационарные значения амплитуд a (кривая 1), σ (кривая 2) и D (сплошная линия). Неустойчивое решение, появляющееся при $D > D_{th}$, показано штриховой линией. Устойчивое и неустойчивое решения при некоторой величине накачки $D_0 = D'_0$ отмечены тёмными кружками.

соответствующее стационарной генерации спазера с частотой $\omega = (\omega_{sp}\tau_a + \omega_{TLS}\tau_\sigma)/(\tau_a + \tau_\sigma)$, а фазы φ , ψ удовлетворяют соотношению

$$\cos(\psi - \varphi) = \frac{1}{\sqrt{1 + \tau_a^2(\delta - \Delta)^2}}.$$

Данное решение устойчиво при превышении накачкой D_0 порогового значения

$$D_{th} = \frac{1 + \Delta^2\tau_a^2}{\Omega_R^2\tau_a\tau_\sigma}. \tag{8r}$$

При этом стационарное значение инверсии населённостей фиксируется на значении $D = D_{th}$ и перестаёт возрастать с увеличением накачки (рис. 1) [8, 12, 43].

4. Режим установления стационарной генерации, осцилляции Раби

Использование метаматериалов на основе спазеров предполагает, что такая среда будет модифицировать проходящую по ней электромагнитную волну. Однако наличие собственной частоты и амплитуды колебаний у спазера, казалось бы, препятствует использованию спазеров в качестве включений, активно взаимодействующих с внешней волной [6]. Эффективность взаимодействия можно повысить, если работать в переходном режиме. В рамках численного эксперимента М. Стокманом показано [12], что во время переходного режима спазер проявляет сложную, сильно нелинейную динамику. При этом амплитуда колебаний спазера может в несколько раз превосходить амплитуду как начальных, так и стационарных колебаний спазера, т.е. спазер можно использовать как усилитель.

Переход спазера к стационарным автоколебаниям определяется тремя характерными временами: временами релаксации поляризации НЧ τ_a , КТ τ_σ и временем релаксации инверсии населённостей τ_D . Из-за высоких потерь в металле время τ_a является самым коротким. Экспериментальное значение $\tau_a \sim (10^{-14} - 10^{-13})$ с [76], что совпадает с оценкой, полученной из классической электродинамики [43]. Типичные экспериментальные значения $\tau_\sigma = 10^{-11}$ с и $\tau_D = 10^{-13}$ с [77–79]. Таким образом, для металлической НЧ и полупроводниковой КТ

получаем следующее соотношение времён: $\tau_a < \tau_D \ll \tau_\sigma$. Полное время установления автоколебаний определяется наибольшим временем, $\sim \tau_\sigma$.

Численное моделирование показало, что характер переходного процесса сильно зависит от начального значения амплитуды дипольного момента НЧ $a(0)$. Для изначально "холодного" спазера $a(0) \ll 1$ и электрическое поле НЧ меньше поля КТ. При этом энергия переходит от КТ к НЧ, а величина $a(t)$ стремится к стационарному значению (8а). В случае большого начального значения, $a(0) \gg 1$, которое может быть достигнуто возбуждением НЧ наносекундным оптическим импульсом [6, 12], переходный процесс является более сложным и протекает в две стадии [22]. Во время первой стадии КТ находится в сильном поле НЧ и амплитуда автоколебаний спазера испытывает осцилляции Раби с характерным периодом $\tau_R = 2\pi/\Omega_R$. При этом поток энергии периодически меняет своё направление от НЧ к КТ и обратно. В течение времени $\sim \tau_a \ln|a(0)|$ эти осцилляции затухают вследствие диссипации в НЧ и КТ. Во время второй стадии спазер проявляет динамику, характерную для малых $a(0)$, когда амплитуда колебаний спазера монотонно стремится к стационарному значению. При характерном для спазера соотношении времён $\tau_a < \tau_D \ll \tau_\sigma$ его динамика слабо зависит от τ_D . Полное время переходного режима порядка τ_σ (рис. 2).

Частоту осцилляций, наблюдаемых при численном моделировании, можно легко оценить для случая точного резонанса $\delta = \Delta = 0$. Опуская члены, отвечающие за релаксацию и накачку, что можно сделать на начальной стадии процесса, когда все переменные спазера далеки от своих стационарных значений, получаем редуцированную систему уравнений

$$\dot{a} = -i\Omega_R\sigma, \tag{9}$$

$$\dot{\sigma} = i\Omega_R a D, \tag{10}$$

$$\dot{D} = 2i\Omega_R(a^*\sigma - \sigma^*a). \tag{11}$$

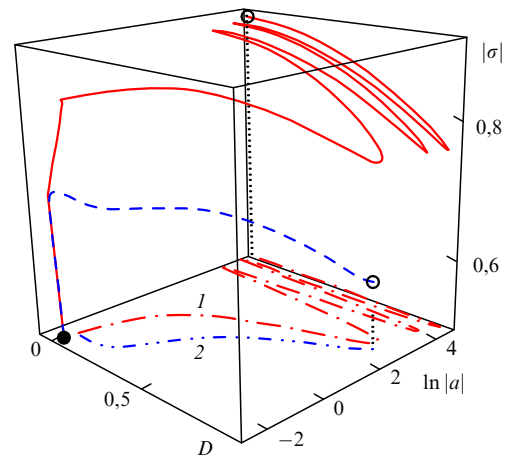


Рис. 2. Динамика спазера при $|\sigma| = 0,5$, $\tau_a = 10^{-14}$ с, $\tau_\sigma = 10^{-11}$ с, $\tau_D = 10^{-13}$ с, $\Omega_R = 10^{13}$ с⁻¹. Светлые кружки соответствуют начальным условиям двух траекторий, исходящих из $a(0) = 40 + 25i$, $\sigma(0) = 0,9$, $D(0) = 0,05$ (сплошная линия) и из $a(0) = 5$, $\sigma(0) = 0,65$, $D(0) = 0,9$ (штриховая линия). Стационарное состояние обозначено тёмным кружком. Кривые 1 и 2 соответствуют проекциям этих траекторий на плоскость $|\sigma| = 0,5$.

Подстановка в (11) уравнения (9) и сопряжённого ему даёт уравнение Ньютона

$$\frac{d^2|a|}{dt^2} = \frac{\partial U(|a|)}{\partial a} \quad (12)$$

для "частицы" с единичной массой и координатой $|a|$, движущейся в потенциале $U(|a|) = 0,5(\Omega_R^2|a|^4 - C_1\Omega_R^2|a|^2)$, где C_1 — постоянная интегрирования [22]. Устойчивым положением равновесия такой "частицы" будет $|a|_{\text{stable}} = \sqrt{C_1/2} = [|a(0)|^2 + D(0)/2]^{1/2}$, а частота малых колебаний около этого положения равновесия

$$\Omega = 2|a(0)|\Omega_R. \quad (13)$$

Это выражение совпадает с частотой осцилляций Раби, которые возникают при взаимодействии двухуровневой КТ с классическим гармоническим полем амплитуды $a(0)$ или квантованным полем с числом квантов $\hat{a}^\dagger(0)\hat{a}(0) = n = |a(0)|^2$ [70].

5. Спазер в поле внешней оптической волны, синхронизация спазера

Рассмотрим теперь динамику НЧ и КТ в поле внешней оптической волны $E(t) = E \cos(\nu t)$. Считая внешнее поле классическим и ограничиваясь дипольным взаимодействием, запишем гамильтониан системы в виде

$$\hat{H}_{\text{eff}} = \hat{H} + \hbar\Omega_1(\hat{a}^\dagger + \hat{a})[\exp(i\nu t) + \exp(-i\nu t)] + \hbar\Omega_2(\hat{\sigma}^\dagger + \hat{\sigma})[\exp(i\nu t) + \exp(-i\nu t)], \quad (14)$$

где \hat{H} определяется выражением (4), $\Omega_1 = -\mu_{\text{НР}}\mathbf{E}/\hbar$, $\Omega_2 = -\mu_{\text{ТЛС}}\mathbf{E}/\hbar$ — константы связи НЧ и КТ с внешним полем.

Уравнения движения, как и ранее, представляют собой уравнения Гейзенберга для медленных амплитуд операторов \hat{a} , $\hat{\sigma}$, \hat{D} :

$$\dot{\hat{D}} = 2i\Omega_R(\hat{a}^\dagger\hat{\sigma} - \hat{\sigma}^\dagger\hat{a}) + 2i\Omega_2(\hat{\sigma} - \hat{\sigma}^\dagger) - \frac{\hat{D} - \hat{D}_0}{\tau_D}, \quad (15)$$

$$\dot{\hat{\sigma}} = \left(i\delta_E - \frac{1}{\tau_\sigma}\right)\hat{\sigma} + i\Omega_R\hat{a}\hat{D} + i\Omega_2\hat{D}, \quad (16)$$

$$\dot{\hat{a}} = \left(i\Delta_E - \frac{1}{\tau_a}\right)\hat{a} - i\Omega_R\hat{\sigma} - i\Omega_1. \quad (17)$$

Здесь $\delta_E = \nu - \omega_{\text{ТЛС}}$, $\Delta_E = \nu - \omega_{\text{СП}}$ — расстройки частот во внешнем оптическом поле.

Система уравнений (15)–(17) имеет три стационарных решения $\{a_i, \sigma_i, D_i\}$, $i = 1, 2, 3$. Линейный анализ устойчивости этих решений, $a(t) - a_i \sim \exp(\lambda t)$, $\sigma(t) - \sigma_i \sim \exp(\lambda t)$, $D(t) - D_i \sim \exp(\lambda t)$, показал, что устойчивыми ($\text{Re } \lambda < 0$) являются лишь решения, расположенные на нижней ветви кривых, изображённых на рис. 3а, б. Для нулевой расстройки $\Delta_E = \delta_E = 0$ в отсутствие поля точки, отмеченные на рис. 3а, соответствуют точкам, отмеченным на рис. 1. При ненулевой расстройке устойчивая ветвь $D(E)$ решений существует только при достаточно большой амплитуде поля, $E > E_{\text{synch}}(\Delta_E)$ (рис. 3б).

Таким образом, величина $E_{\text{synch}}(\Delta_E)$ является нижней границей области, внутри которой спазер синхронизируется внешней волной. Такое пороговое поведение характерно для нелинейных систем под периодическим

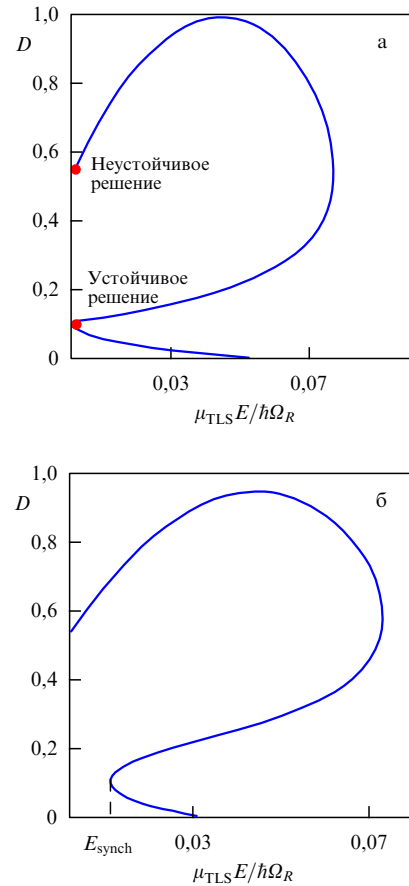


Рис. 3. Зависимость стационарного значения инверсной населённости D от амплитуды внешнего поля, $\tau_a = 10^{-14}$ с, $\tau_\sigma = 10^{-11}$ с, $\tau_D = 0,5 \times 10^{-14}$ с, $\Omega_R = 10^{13}$ с $^{-1}$: (а) $\Delta_E = \delta_E = 0$, (б) $\Delta_E = \delta_E = 10^{11}$ с $^{-1}$.

внешним воздействием, а область значений параметров E и Δ_E , в которой имеет место синхронизация, называется языком Арнольда [80–82]. Качественно границу языка Арнольда можно получить, рассматривая внешнюю волну как возмущение.

В нулевом приближении по полю E у системы (15)–(17) есть стационарное решение (5)–(7). Найдём решение в первом приближении по полю E . Подставляя $a = |a| \exp(i\varphi)$ и $\sigma = |\sigma| \exp(i\psi)$ в уравнение (17), получаем

$$\begin{aligned} \frac{d|a|}{dt} \exp(i\varphi) + i \frac{d\varphi}{dt} |a| \exp(i\varphi) = \\ = \left(i\Delta_E - \frac{1}{\tau_a}\right) |a| \exp(i\varphi) - i\Omega_R |\sigma| \exp(i\psi) - i\Omega_1. \end{aligned} \quad (18)$$

Деля обе части (18) на $|a| \exp(i\varphi)$, приводим мнимую часть уравнения к виду

$$\dot{\varphi} = \Delta_E - \Omega_R \frac{|\sigma|}{|a|} \cos(\psi - \varphi) - \frac{\Omega}{|a|} \cos \varphi. \quad (19)$$

Подставляя в (19) вместо $|a|$, $|\sigma|$ и $\cos(\psi - \varphi)$ значения (8), получаем [8, 22] уравнение движения передемпфированной "частицы" с координатой φ

$$\dot{\varphi} = -\frac{\partial \Phi(\varphi)}{\partial \varphi} \quad (20)$$

в потенциале $\Phi(\varphi) = -\Delta_E \varphi + \Omega_1 \sin \varphi / |a|$.

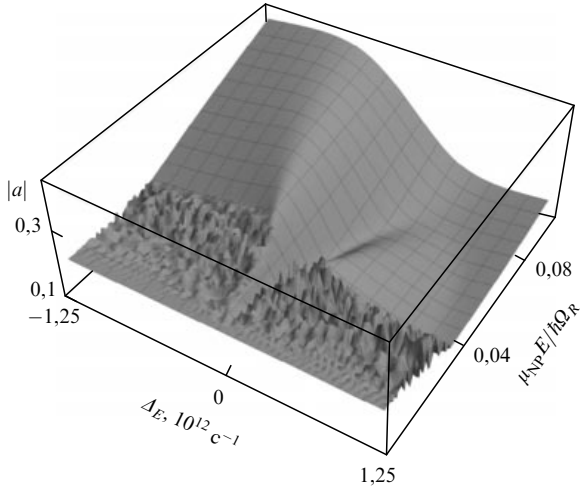


Рис. 4. Зависимость безразмерного дипольного момента НЧ от амплитуды внешнего оптического поля E и от расстройки частот ΔE . Спекл-структура при малых значениях амплитуды внешнего поля соответствует хаотическому поведению дипольного момента.

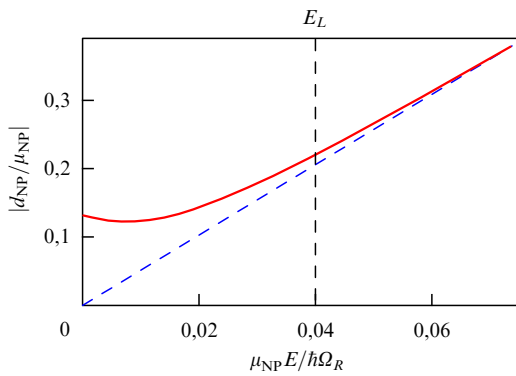


Рис. 5. Зависимость амплитуды дипольного момента НЧ от величины внешнего поля при нулевой расстройке.

Динамика фазы представляет собой скольжение этой "частицы" по потенциальному профилю в вязкой жидкости. При $|\Omega_1| < |a\Delta E|$ имеет место однонаправленное движение. Скорость "частицы" осциллирует, причём период осцилляции стремится к бесконечности по мере приближения к критической ситуации $|\Omega_1| = |a\Delta E|$. При $|\Omega_1| > |a\Delta E|$ "частица" попадает в один из минимумов потенциальной функции $\Phi(\varphi)$, что соответствует режиму синхронизации: фаза колебаний φ "захватывается" и перестаёт изменяться во времени. Таким образом, в области малых полей $E \ll \hbar\Omega_R / \mu_{NP}$ язык Арнольда спазера имеет форму клина.

Численное моделирование показало, что граница области синхронизации описывается кривой $E_{\text{synch}}(\Delta E)$ (рис. 4). Вне этой области решение носит нерегулярный по времени характер, соответствующий хаотическому поведению спазера.

Заметим, что отклик спазера, пришедшего в стационарное состояние, во время длительного ($\gg \tau_\sigma$) воздействия внешнего поля качественно отличается от отклика спазера во время действия "импульсного" ($\ll \tau_D$) внешнего поля, когда можно не учитывать изменения инверсной населённости, вызванного внешним полем. Если в первом случае отклик является нелинейным, в частности,

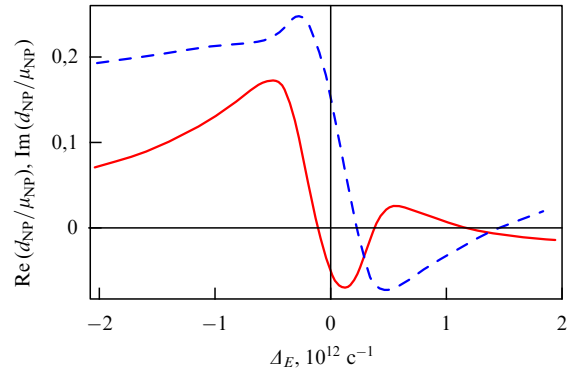


Рис. 6. Зависимость действительной (сплошная кривая) и мнимой (штриховая кривая) частей дипольного момента НЧ от расстройки частот ΔE для амплитуды внешнего поля, превышающей порог синхронизации, $E > E_{\text{synch}}(\Delta E)$.

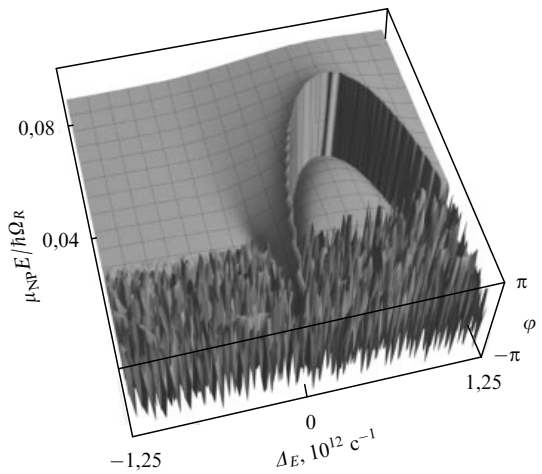


Рис. 7. Зависимость $\varphi = \tan^{-1}(\text{Im } d_{NP} / \text{Re } d_{NP})$ от амплитуды внешнего поля E и расстройки ΔE . Гладкая часть поверхности соответствует области языка Арнольда, в которой спазер синхронизируется внешним полем. На линии разрыва $E_{\text{com}}(\Delta E)$, где $\varphi = \pi$, потери точно компенсируются.

в слабых полях $E \sim E_{\text{synch}}(\Delta E)$ дипольный момент вообще не зависит от внешнего поля и определяется расстройкой по частоте и уровнем накачки (рис. 5), то во втором случае дипольный момент спазера пропорционален внешнему полю [50, 56, 57].

В отсутствие накачки ($D_0 = -1$) решение оптических уравнений Блоха даёт ответ, близкий к предсказаниям классической теории отклика одиночной НЧ: в зависимости от частоты действительная часть дипольного момента НЧ может принимать как положительные, так и отрицательные значения, тогда как его мнимая часть всегда положительна. Это соответствует передаче энергии от внешнего поля к спазеру. При наличии накачки с частотой, близкой к частоте генерации спазера, мнимая часть дипольного момента для некоторых значений ΔE может принимать отрицательные значения, что соответствует передаче энергии от спазера внешнему полю (рис. 6) [20].

Заметим, что при заданном значении внешнего поля существуют две частоты, на которых мнимая часть дипольного момента обращается в нуль, т.е. имеет место полная компенсация (см. рис. 6). Эти точки лежат на кривой полной компенсации $E = E_{\text{com}}(\Delta E)$ (рис. 7),

определяемой выражением [20]

$$\left(\frac{\mu_{\text{NP}} E_{\text{com}}(\Delta_E)}{\hbar}\right)^2 = \frac{1}{4} \left[-\frac{\tau_D \tau_\sigma^3}{\tau_a} \Delta_E^4 + D_0 \Omega_R \tau_\sigma^3 \frac{\mu_{\text{TLS}}}{\mu_{\text{NP}}} \frac{\Delta_E^3}{\tau_D} - \left(\frac{\tau_\sigma}{\tau_D} - \Omega_R^2 D_0 \frac{\tau_a \tau_\sigma^2}{\tau_D}\right) \Delta_E^2 \right] \left(\tau_\sigma \Delta_E \frac{\mu_{\text{TLS}}}{\mu_{\text{NP}}} + \tau_a \Omega_R\right)^{-2}. \quad (21)$$

При $\Delta_E \rightarrow 0$ выражение (21) переходит в

$$\left(\frac{\mu_{\text{NP}} E}{\hbar}\right)^2 = (D_0 - D_{\text{th}}) \Delta_E^2 \left(\frac{\tau_\sigma^2}{\tau_D \tau_a}\right).$$

Таким образом, $E \propto (D_0 - D_{\text{th}})^{1/2} \Delta_E$, и эта кривая лежит внутри языка Арнольда [20].

На рисунке 7 изображена разность фаз дипольного момента НЧ и внешнего поля, полученная численным решением системы (15)–(17). Линия разрыва, она же линия компенсации $E_{\text{com}}(\Delta_E)$, соответствует разности фаз π , когда мнимая часть дипольного момента равна нулю. При этом действительная часть дипольного момента НЧ оказывается отрицательной.

Если амплитуда внешнего поля соответствует точке, лежащей ниже кривой компенсации, то энергия будет передаваться от спазера полю и амплитуда волны по мере распространения по системе спазеров должна возрастать, приближаясь к значению $E_{\text{com}}(\Delta_E)$. Если точка находится выше кривой, то энергия будет поглощаться внутри спазера и волна будет ослабевать, стремясь к тому же значению. Таким образом, ожидается, что по системе будет распространяться волна, амплитуда которой устойчиво выходит на значение, определяемое уровнем накачки спазера и рассогласованием частот².

Приведённые выше рассуждения основаны на анализе поведения единичного спазера. При переходе от единичного спазера к системе спазеров могут возникнуть коллективные эффекты, связанные со взаимодействием спазеров между собой, что может качественно изменить картину прохождения волны по активному метаматериалу.

6. Коллективные возбуждения цепочки спазеров

Итак, мы видели, что спазер может синхронизировать свою работу под действием внешнего поля. Однако для создания метаматериалов необходимо знать, как работает система спазеров. В этом случае коллективное взаимодействие между спазерами может существенно изменять условия генерации и приводить к новым явлениям. Действительно, со времён Гюйгенса известно, что автоколебательные системы могут синхронизировать свою работу при наличии даже слабого взаимодействия между ними [81, 82]. Аналогичные явления могут происходить и в системе спазеров.

Ниже мы рассмотрим коллективное взаимодействие автоколебаний спазеров при генерации выше пороговой на простейшем примере линейки спазеров. При этом возможны два сценария работы системы спазеров. Во-

первых, работа всех спазеров может быть синхронизована и они начнут работать в фазе. Во-вторых, возможен сценарий, в котором возбуждение КТ будет передаваться коллективной моде [2, 23, 65, 83, 84]. В качестве коллективной моды выступает волна дипольных моментов, распространяющаяся вдоль цепочки плазмонных наночастиц (см. [60] и цитируемую там литературу).

Для малых отклонений частоты от плазмонной дисперсионная зависимость волны дипольных моментов, распространяющейся по цепочке НЧ, принимает вид

$$\omega(k) = \omega_{\text{SP}} + \gamma_i \frac{\omega_1^2}{\omega_{\text{SP}}} \cos(kb), \quad (22)$$

где $\omega_1^2 = r_{\text{NP}}^3 \omega_{\text{pl}}^2 / (3b^3)$, $\gamma_1 = 1$ для продольных мод и $\gamma_1 = -2$ для поперечных [60]. Данное решение теряет смысл при $k < k_0 = \omega/c$, когда мода превращается в вытекающую (см. [85]), т.е. происходит излучение фотонов. Для единичного спазера безрадиационное возбуждение плазмонов превалирует над излучением фотонов при $(k_0 r_{\text{NP-TLS}})^3 \ll 1$, где $r_{\text{NP-TLS}}$ определяет характерный масштаб системы. В случае коллективной моды в качестве масштаба длины r необходимо брать k^{-1} , т.е. для $k < k_0$ получаем $(k_0 r)^3 \geq 1$ и энергия будет в основном передаваться фотонам. В данной ситуации из-за взаимной синхронизации спазеров ($k = 0$) должен наблюдаться эффект, аналогичный рассмотренному в [14], когда все спазеры излучают в одном направлении.

Диполь-дипольное взаимодействие между ближайшими спазерами приводит к появлению дополнительных членов в гамильтониане (4). Наряду с Ω_R появляются $\Omega_{\text{NP-NP}}$ — константа взаимодействия между соседними НЧ, $\Omega_{\text{NP-TLS}}$ — константа взаимодействия между КТ и соседними НЧ, а также $\Omega_{\text{TLS-TLS}}$ — константа взаимодействия между соседними КТ.

Учёт только $\Omega_{\text{NP-NP}}$ приводит к решению в виде гармонической волны с уравнением дисперсии

$$\omega_k = \omega_a + \Omega_{\text{NP-NP}}^{\text{eff}} \cos(kb),$$

где $\Omega_{\text{NP-NP}}^{\text{eff}} = 2\Omega_{\text{NP-NP}} \tau_a / (\tau_a + \tau_\sigma)$. Данное решение существует при условии, что накачка превосходит пороговое значение

$$D_{\text{th}}(k) = \frac{1 + (\Omega_{\text{NP-NP}}^{\text{eff}} \tau_\sigma)^2 \cos^2(kb)}{\Omega_R^2 \tau_a \tau_\sigma}.$$

Несмотря на внешнюю схожесть дисперсионных уравнений для волн, распространяющихся по цепочке НЧ и по цепочке спазеров, между этими системами существует принципиальное различие. Во-первых, амплитуда волн, распространяющихся по цепочке спазеров, фиксирована и определяется уровнем накачки

$$a_{n,k} = \frac{1}{2} \exp(i\varphi) \sqrt{\left[D_0 - \frac{1 + (\Omega_{\text{NP-NP}}^{\text{eff}} \tau_\sigma)^2 \cos^2(kb)}{\Omega_R^2 \tau_a \tau_\sigma} \right] \frac{\tau_a}{\tau_\sigma}}. \quad (23)$$

Данная автоволна отличается от решений типа солитонов и кинков, известных для других нелинейных систем [86], являясь чисто гармонической волной. Во-вторых, если для линейной системы НЧ справедлив принцип суперпозиции, то для цепочки спазеров имеет место

² Заметим, что если бы при прохождении слабой волны по системе спазеров, находящихся в стохастическом режиме (вне языка Арнольда), происходило её усиление, то система была бы неустойчивой. Наблюдалось бы спонтанное возбуждение волны, амплитуда которой определяется "линией компенсации".

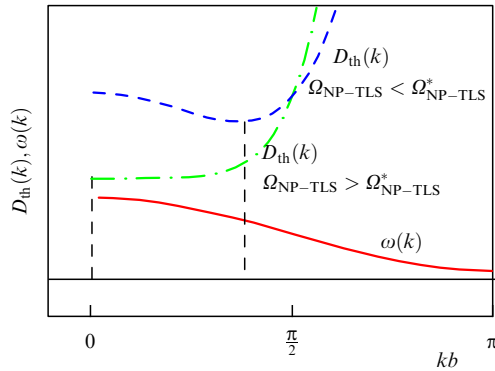


Рис. 8. Зависимость порогового значения накачки от величины волнового вектора k для $\Omega_{\text{NP-TLS}} < \Omega_{\text{NP-TLS}}^*$ (штриховая кривая) и $\Omega_{\text{NP-TLS}} > \Omega_{\text{NP-TLS}}^*$ (штрихпунктирная кривая). Сплошная кривая показывает зависимость $\omega(k)$.

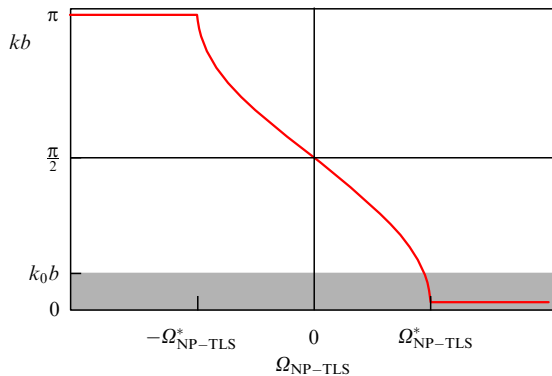


Рис. 9. Зависимость величины волнового вектора от константы взаимодействия между соседними НЧ и КТ. Тёмная область соответствует решению типа вытекающей волны.

необычная ситуация: все автоволны, кроме одной с $k = \pm\pi/2b$, являются неустойчивыми, и любое начальное возмущение эволюционирует в эту волну.

Учёт взаимодействия КТ с соседними НЧ качественно меняет ситуацию. Пороговое значение накачки становится равным

$$D_{\text{th}}(k) = \frac{1 + (\tau_{\sigma}\Omega_{\text{NP-NP}}^{\text{eff}})^2 \cos^2(kb)}{[\Omega_{\text{R}} + 2\Omega_{\text{NP-TLS}} \cos(kb)]^2 \tau_{\sigma}},$$

и условие устойчивости совпадает с условием минимума $D_{\text{th}}(k)$ (рис. 8).

Из рисунка 8 видно, что существует критическое значение константы взаимодействия

$$\Omega_{\text{NP-TLS}}^* = \frac{1}{2}(\tau_{\sigma}\Omega_{\text{NP-NP}}^{\text{eff}})^2 \Omega_{\text{R}},$$

разделяющее частотно диспергирующие волны и волны с $k = \pm\pi/b$ или с $k = 0$ (рис. 9). Волны с $k < k_0$ распространяться вдоль цепочки не могут, так как в этом случае они становятся вытекающими волнами [85].

7. Заключение

Потребность в устройствах, способных манипулировать светом в областях, меньших оптической длины волны, т.е. с размерами порядка десяти нанометров, огромна: это SNOM (Scanning Near-field Optical Microscopy),

SERS, оптоэлектронные устройства и т.д. Очевидно, что в ряду этих устройств находятся и когерентные наноразмерные источники оптического излучения, т.е. нанолазеры. Одним из возможных способов их реализации является спазер, роль резонатора в котором играет плазмонная наночастица.

Однако оказывается, что спазер может быть применен не только как отдельное сверхбыстрое (с временем срабатывания в несколько фемтосекунд) устройство, но и как активное включение в нанокompозитах, в том числе метаматериалах. Действительно, композитный материал на основе спазеров представляет собой новый нелинейный объект исследования с уникальными свойствами. Спазер при установлении стационарного режима спазирования испытывает осцилляции Раби, поэтому свойства этого материала могут управляться интенсивностью внешнего оптического возмущения. В стационарном режиме материал реагирует на частоту возмущения, переходя от стохастических колебаний к распространению плазмонных автоволн, причём амплитуда распространяющихся волн слабо зависит от амплитуды входящего сигнала и определяется в основном уровнем накачки. Такие материалы могут оказаться перспективными и найти применение в оптоэлектронике и метаплазмонике.

Авторы выражают благодарность Дж. Пендри за критическое обсуждение данной работы. Исследования частично поддержаны грантами РФФИ 10-02-92115, 10-02-91750 и грантом PSC-CUNY, а также фондом некоммерческих программ "Династия".

Список литературы

1. Bozhevolnyi S I (Ed.) *Plasmonic. Nanoguides and Circuits* (Singapore: Pan Stanford Publ., 2009)
2. Chang D E et al. *Phys. Rev. Lett.* **97** 053002 (2006)
3. Gaponenko S V *Introduction to Nanophotonics* (Cambridge: Cambridge Univ. Press, 2010)
4. Martín-Cano D et al. *Nano Lett.* **10** 3129 (2010)
5. Plum E et al. *Opt. Express* **17** 8548 (2009)
6. Premaratne M, Agrawal G P *Light Propagation in Gain Media. Optical Amplifiers* (New York: Cambridge Univ. Press, 2011)
7. Protsenko I E et al. *J. Phys. Conf. Ser.* **107** 012010 (2008)
8. Protsenko I E et al. *Phys. Rev. A* **71** 063812 (2005)
9. Ridolfo A et al. *Phys. Rev. Lett.* **105** 263601 (2010)
10. Rosenthal A S, Ghannam T *Phys. Rev. A* **79** 043824 (2009)
11. Stockman M I *New J. Phys.* **10** 025031 (2008)
12. Stockman M I *J. Opt.* **12** 024004 (2010)
13. Wang Z M, Neogi A (Eds) *Nanoscale Photonics and Optoelectronics* (New York: Springer Science + Business Media, 2010)
14. Zheludev N I et al. *Nature Photon.* **2** 351 (2008)
15. Климов В В *ВФН* **178** 875 (2008) [Klimov V V *Phys. Usp.* **51** 839 (2008)]
16. Novotny L, Hecht B *Principles of Nano-Optics* (Cambridge: Cambridge Univ. Press, 2006) [Новотный Л, Хехт Б *Основы нанооптики* (М.: Физматлит, 2009)]
17. Maier S A *Plasmonics. Fundamentals and Applications* (New York: Springer, 2007) [Майер С А *Плазмоника: Теория и приложения* (М.-Ижевск: РХД, 2011)]
18. Сарычев А К, Шалаев В М *Электродинамика метаматериалов* (М.: Научный Мир, 2011); Sarychev A K, Shalaev V M *Electrodynamics of Metamaterials* (Singapore: World Scientific, 2007)
19. Shalaev V M, Kawata S (Eds) *Nanophotonics with Surface Plasmons* (Amsterdam: Elsevier, 2007)
20. Andrianov E S et al. *Opt. Lett.* **36** 4302 (2011)
21. Andrianov E S et al. *Opt. Express* **19** 24849 (2011)
22. Andrianov E S et al. *Phys. Rev. B* **85** 035405 (2012)
23. Lisyansky A A et al. *Phys. Rev. B* **84** 153409 (2011)

24. Андрианов Е С и др. *Радиотехника и электроника* **56** 1501 (2011) [Andrianov E S et al. *J. Commun. Technol. Electron.* **56** 1471 (2011)]
25. Андрианов Е С и др. *Радиотехника и электроника* **57** 114 (2012) [Andrianov E S et al. *J. Commun. Technol. Electron.* **57** 106 (2012)]
26. Berndt R, Gimzewski J K, Johansson P *Phys. Rev. Lett.* **67** 3796 (1991)
27. Blackie E J, Le Ru E C, Etchegoin P G *J. Am. Chem. Soc.* **131** 14466 (2009)
28. Le Ru E C et al. *J. Phys. Chem. C* **111** 13794 (2007)
29. Kneipp K, Moskovits M, Kneipp H (Eds) *Surface-Enhanced Raman Scattering. Physics and Applications* (Berlin: Springer, 2006)
30. Schlücker S (Ed.) *Surface Enhanced Raman Spectroscopy: Analytical, Biophysical and Life Science Applications* (Weinheim: Wiley-VCH, 2011)
31. Cai W, Shalaev V *Optical Metamaterials: Fundamentals and Applications* (New York: Springer, 2010)
32. Pendry J B *Phys. Rev. Lett.* **85** 3966 (2000)
33. Belov P A, Simovski C R, Ikonen P *Phys. Rev. B* **71** 193105 (2005)
34. Chen H et al. *Phys. Rev. Lett.* **99** 063903 (2007)
35. Cummer S A et al. *Phys. Rev. E* **74** 036621 (2006)
36. Leonhardt U *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.* **9** 102 (2003)
37. Liu Z et al. *Science* **315** 1686 (2007)
38. Pendry J B, Schurig D, Smith D R *Science* **312** 1780 (2006)
39. Schurig D et al. *Science* **314** 977 (2006)
40. Yang J et al. *Opt. Express* **17** 19656 (2009)
41. Колоколов А А, Скродский Г В *УФН* **162** (12) 165 (1992) [Kolokolov A A, Skrotskii G V *Sov. Phys. Usp.* **35** 1089 (1992)]
42. Vinogradov A P, Dorofeenko A V *Opt. Commun.* **256** 333 (2005)
43. Лагарьков А Н и др. *УФН* **179** 1018 (2009) [Lagarkov A N et al. *Phys. Usp.* **52** 959 (2009)]
44. Noginov M A et al. *Opt. Express* **16** 1385 (2008)
45. Noginov M A et al. *Opt. Lett.* **31** 3022 (2006)
46. Popov A K, Shalaev V M *Opt. Lett.* **31** 2169 (2006)
47. Anantha Ramakrishna S, Pendry J B *Phys. Rev. B* **67** 201101(R) (2003)
48. Sarychev A K, Pukhov A A, Tartakovskiy G *PIERS Online* **3** 1264 (2007)
49. Sarychev A K, Tartakovskiy G *Proc. SPIE* **6320** 63200A (2006)
50. Wuestner S et al. *Phys. Rev. Lett.* **105** 127401 (2010)
51. Yu Z et al. *Appl. Phys. Lett.* **92** 041117 (2008)
52. Шатров А Д *Радиотехника и электроника* **52** 909 (2007) [Shatrov A D *J. Commun. Technol. Electron.* **52** 842 (2007)]
53. Шатров А Д *Радиотехника и электроника* **52** 1430 (2007) [Shatrov A D *J. Commun. Technol. Electron.* **52** 1324 (2007)]
54. Bergman D J, Stockman M I *Phys. Rev. Lett.* **90** 027402 (2003)
55. Noginov M A et al. *Nature* **460** 1110 (2009)
56. Fang A, Koschny T, Soukoulis C M *J. Opt.* **12** 024013 (2010)
57. Fang A et al. *Phys. Rev. B* **79** 241104(R) (2009)
58. Gabitov I R, Kennedy B, Maimistov A I *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.* **16** 401 (2010)
59. Быков В П *Лазерная электродинамика. Элементарные и когерентные процессы при взаимодействии лазерного излучения с веществом* (М.: Физматлит, 2006)
60. Климов В В *Нанооптика* (М.: Физматлит, 2010)
61. Davis L C *Phys. Rev. B* **14** 5523 (1976)
62. Eguiluz A, Maradudin A A *Phys. Rev. B* **14** 5526 (1976)
63. Gramotnev D K, Vozhevolnyi S I *Nature Photon.* **4** 83 (2010)
64. Novikov I V, Maradudin A A *Phys. Rev. B* **66** 035403 (2002)
65. Hill M T et al. *Opt. Express* **17** 11107 (2009)
66. Зуев В С, Препринт № 3 (М.: ФИАН им. П.Н. Лебедева, 2006)
67. Зуев В С, Зубева Г Я *Оптика и спектроскопия* **107** 648 (2009) [Zuev V S, Zueva G Ya *Opt. Spectrosc.* **107** 614 (2009)]
68. Palik E D (Ed.) *Handbook of Optical Constants of Solids* (Orlando: Academic Press, 1985)
69. Muller A et al. *Appl. Phys. Lett.* **84** 981 (2004)
70. Scully M O, Zubairy M S *Quantum Optics* (Cambridge: Cambridge Univ. Press, 1997) [Скалли М О, Зубайри М С *Квантовая оптика* (М.: Физматлит, 2003)]
71. Milonni P W *J. Mod. Opt.* **42** 1991 (1995)
72. Ландау Л Д, Лифшиц Е М, Питаевский Л П *Электродинамика сплошных сред* (М.: Физматлит, 2003) [Landau L D, Lifshitz E M, Pitaevskii L P *Electrodynamics of Continuous Media* (Oxford: Pergamon Press, 1984)]
73. Sarychev A K, Tartakovskiy G *Phys. Rev. B* **75** 085436 (2007)
74. Pantell R H, Puthoff H E *Fundamentals of Quantum Electronics* (New York: Wiley, 1969) [Пантел Р, Путхоф Г *Основы квантовой электроники* (М.: Мир, 1972)]
75. Li K et al. *Phys. Rev. B* **71** 115409 (2005)
76. Stietz F et al. *Phys. Rev. Lett.* **84** 5644 (2000)
77. Bayer M, Forchel A *Phys. Rev. B* **65** 041308(R) (2002)
78. Harbold J M et al. *Phys. Rev. B* **72** 195312 (2005)
79. Sosnowski T S et al. *Phys. Rev. B* **57** R9423 (1998)
80. Анищенко В С, Астахов В В, Вадивасова Т Е *Регулярные и хаотические автоколебания. Синхронизация и влияние флуктуаций* (Долгопрудный: Интеллект, 2009)
81. Кузнецов А П, Кузнецов С П, Рыскин Н М *Нелинейные колебания* (М.: Физматлит, 2002)
82. Pikoovsky A, Rosenblum M, Kurths J *Synchronization. A Universal Concept in Nonlinear Sciences* (Cambridge: Cambridge Univ. Press, 2001) [Пиковский А, Розенблум М, Куртс Ю *Синхронизация. Фундаментальное нелинейное явление* (М.: Техносфера, 2003)]
83. Fedyanin D Yu, Arsenin A V *Opt. Express* **19** 12524 (2011)
84. Flynn R A et al. *Opt. Express* **19** 8954 (2011)
85. Вайнштейн Л А *Электромагнитные волны* (М.: Радио и связь, 1988)
86. Scott A *Nonlinear Science. Emergence and Dynamics of Coherent Structures* (Oxford: Oxford Univ. Press, 2003) [Скотт Э *Нелинейная наука: рождение и развитие когерентных структур* (М.: Физматлит, 2007)]

PACS numbers: 33.50.Dq, 73.20.Mf, 78.20.Ek
DOI: 10.3367/UFNr.0182.201210k.1130

Управление излучением киральных молекул с помощью киральных нанометтачастиц

В.В. Климов, Д.В. Гузатов

1. Введение

В настоящее время благодаря развитию нанотехнологий появились новые области оптики — нанооптика и нано-плазмоника, предметом которых являются весьма нетривиальные свойства оптических полей на наномасштабах и их практические приложения [1, 2]. Одним из важнейших достижений в этой области является возможность эффективно управлять излучением обычных атомов и молекул с помощью наночастиц (Surface Enhanced Raman Scattering (SERS), Surface Enhanced Fluorescence (SEF)) [3–6]. Интересные эффекты были также обнаружены при исследовании влияния киральных наночастиц или наночастиц из метаматериалов с отрицательным показателем преломления на излучение обычных молекул [7, 8].

Более сложные оптически активные (киральные) молекулы значительно интереснее, так как именно они составляют основу жизни. При этом возникает естественный вопрос: можно ли эффективно и произвольно управлять излучением киральных молекул и использовать это для различных биомедицинских приложений (например, разделения рацемических смесей)? В настоящей статье будет показано, что это возможно, если для управления использовать наночастицы, изготовленные из метаматериалов (см., например, [9, 10]).

В.В. Климов. Физический институт им. П.Н. Лебедева РАН, Москва, РФ; ООО "Фотонные нанотехнологии", Москва, РФ
E-mail: vvklim@sci.lebedev.ru
Д.В. Гузатов. Гродненский государственный университет им. Я. Купалы, Гродно, Белоруссия

2. Киральность и оптическая активность

Киральность — это свойство систем не совпадать со своим зеркальным изображением ни при каких вращениях и перемещениях [11]. Из этого определения следует, что, во-первых, киральность — это геометрическое свойство объекта, во-вторых, этим свойством могут обладать только пространственные, т.е. трёхмерные, объекты. Наиболее важными киральными объектами являются аминокислоты и сахара, которые в принципе могут существовать в форме правых или левых энантиомеров. Однако чрезвычайно важно то, что правые энантиомеры аминокислот и левые энантиомеры сахаров в живой природе не встречаются. Именно эта асимметрия делает оптические исследования таких и родственных явлений чрезвычайно важными. Возможность таких исследований основана на том, что киральные молекулы часто обладают свойством оптической активности, т.е. по-разному реагируют на свет с различной поляризацией. В частности, если линейно поляризованный свет падает на оптически активные молекулы, то его плоскость поляризации изменяется (вращается) и степень этого вращения определяется фактором

$$\frac{n_{\text{left}} - n_{\text{right}}}{n_{\text{left}} + n_{\text{right}}} \sim \frac{\text{размер молекулы}}{\text{длина волны}} \ll 1, \quad (1)$$

где n_{left} , n_{right} — показатели преломления волн с правой и левой поляризациями.

Поглощение волн с различной круговой поляризацией также различно, и степень этого различия определяется фактором

$$\frac{A_{\text{left}} - A_{\text{right}}}{A_{\text{left}} + A_{\text{right}}} \sim \frac{\text{размер молекулы}}{\text{длина волны}} \ll 1, \quad (2)$$

где A_{left} , A_{right} — показатели поглощения волн с правой и левой поляризациями. Так как размер молекул обычно мал по сравнению с оптическими длинами волн, эффекты оптической активности являются очень слабыми. Несмотря на эту малость, эффекты вращения плоскости поляризации и кругового дихроизма находят широкое применение при исследованиях различных конформаций биомолекул.

Применяя методы нанооптики и наноплазмоники, эти очень малые эффекты можно существенно увеличить (на 4–6 порядков!) с помощью использования наноструктурированных киральных метаматериалов [12] или даже кластеров некиральных наночастиц [13].

Мы же хотим научиться управлять именно *излучением* света киральными молекулами (а не *поглощением* света) с помощью киральных нанометачастиц (см. далее, что это такое).

3. Киральные молекулы

Для того чтобы решить задачу управления излучением света киральными молекулами, надо прежде всего понять разницу между "обычными" и "оптически активными" (киральными) молекулами. Обычные молекулы характеризуются только электрическим дипольным моментом, и их гамильтониан взаимодействия света с веществом имеет вид

$$H_{\text{int}} = -\mathbf{d}\mathbf{E}, \quad (3)$$

где \mathbf{d} — дипольный момент перехода между основным и возбуждённым состояниями, \mathbf{E} — напряжённость элект-

рического поля в области расположения молекулы. Такой гамильтониан в принципе не позволяет описывать явления оптической активности.

Киральные (оптически активные) молекулы имеют как электрический, так и магнитный моменты переходов [14, 15]. Если при этом в качестве модели киральной молекулы рассмотреть спираль, то для правых молекул, для которых электрический и магнитный моменты перехода параллельны, гамильтониан взаимодействия с электромагнитным полем имеет вид

$$H_{\text{int}} = -\mathbf{d}\mathbf{E} - \mathbf{m}\mathbf{H}, \quad (4)$$

в то время как для левых молекул, для которых электрический и магнитный моменты перехода параллельны, гамильтониан взаимодействия с электромагнитным полем

$$H_{\text{int}} = -\mathbf{d}\mathbf{E} + \mathbf{m}\mathbf{H}. \quad (5)$$

В (4) и (5) \mathbf{d} , \mathbf{m} — дипольные моменты перехода между основным и возбуждённым состояниями в правой молекуле, \mathbf{E} , \mathbf{H} — напряжённости электромагнитного поля в области её расположения.

4. Киральные нанометачастицы

Для управления излучением киральных молекул нужно эффективно "перемешивать" электрические и магнитные поля, для чего идеально подходят киральные нанометачастицы. В простейшем случае в качестве такой частицы может быть рассмотрена плазменная киральная наночастица, т.е. слоистая наночастица (наноразмер — размер менее длины волны), ядро которой состоит из золота, а оболочка — из натурального сахара. В общем случае материальные уравнения вещества киральной нанометачастицы имеют вид [16]

$$\mathbf{D} = \varepsilon(\mathbf{E} + \eta \text{rot } \mathbf{E}), \quad \mathbf{B} = \mu(\mathbf{H} + \eta \text{rot } \mathbf{H}), \quad (6)$$

где \mathbf{D} , \mathbf{E} и \mathbf{B} , \mathbf{H} — индукция и напряжённость электрического и магнитного поля соответственно, ε , μ — диэлектрическая и магнитная проницаемости материала киральной среды, η — размерный параметр киральности. Безразмерный параметр киральности удобно ввести выражением $\chi = \omega\eta/c$.

Из (6) видно, что, как и в случае оптически активных молекул (см. (4), (5)), происходит запутывание электрических и магнитных явлений и можно ожидать эффективного взаимодействия таких наночастиц с киральными молекулами. Заметим, что, если говорить более формально, материальные уравнения соответствуют так называемым киральным (биизотропным) средам [17].

Даже малая киральность наночастицы приводит к существенному изменению её резонансных оптических свойств. На рисунке 1 показана зависимость резонансных свойств киральной плазменной сферической наночастицы от диэлектрической и магнитной проницаемостей. Рисунок 1а соответствует случаю нанометачастицы с нулевой киральностью. Из этого рисунка видно, что при $\varepsilon \approx -2$ имеет место обычный плазмонный резонанс, который практически не зависит от магнитной проницаемости наночастицы. Если наночастица имеет сколь угодно малую примесь киральности (рис. 1б), то ситуация существенно меняется, поскольку в результате взаимодействия электрических и магнитных колебаний существенно изменяется структура резонанса, т.е. возникает плазмонно-киральный резонанс. Именно плазмонно-

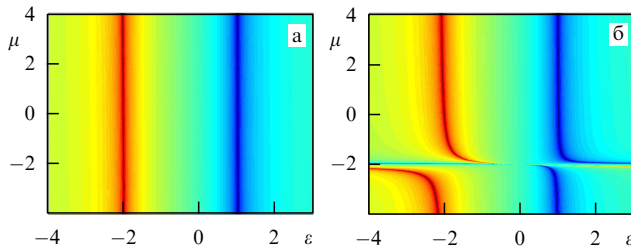


Рис. 1. Кирально-плазмонный резонанс в сферической частице $k_0 a = 0,1$: (а) $\chi = 0$, (б) $\chi = 0,1$.

киральный резонанс позволяет избирательно и эффективно управлять излучением киральных молекул.

5. Квантовая теория излучения киральной молекулы вблизи киральной нанометасферы

Как говорилось во введении, скорость спонтанного излучения существенно зависит от нанокружения, и в этом разделе будет последовательно описана квантовая теория спонтанного излучения киральной молекулы вблизи киральной наночастицы [18].

В киральном случае золотое правило Ферми [19] вполне применимо и скорость спонтанной релаксации может быть описана известным выражением

$$\Gamma = \frac{2\pi}{\hbar} \sum_{\text{final}} |\langle \text{initial} | H_{\text{int}} | \text{final} \rangle|^2 \rho(\omega), \quad (7)$$

где $\rho(\omega)$ — плотность конечных состояний, $H_{\text{int}} = -(\hat{\mathbf{d}}\mathbf{E}(\mathbf{r}_0)) - (\hat{\mathbf{m}}\mathbf{H}(\mathbf{r}_0))$ — гамильтониан взаимодействия электромагнитного поля и киральной молекулы, $\hat{\mathbf{d}} = e\mathbf{r}$, $\hat{\mathbf{m}} = -i\hbar e/(2mc) (\hat{\mathbf{r}} \times \nabla)$ — операторы электрического и магнитного дипольных моментов,

$$\hat{\mathbf{E}}(\mathbf{r}) = i \sum_s \frac{a_s \mathbf{e}(s, \mathbf{r}) - a_s^\dagger \mathbf{e}^*(s, \mathbf{r})}{\sqrt{2}},$$

$$\hat{\mathbf{H}}(\mathbf{r}) = \sum_s \frac{a_s \mathbf{h}(s, \mathbf{r}) + a_s^\dagger \mathbf{h}^*(s, \mathbf{r})}{\sqrt{2}}$$

— операторы квантованного электромагнитного поля (индекс s нумерует моды).

В целом квантование электромагнитного поля сводится к нахождению собственных мод $\mathbf{e}(s, \mathbf{r})$, $\mathbf{h}(s, \mathbf{r})$ системы, и эти моды называются фотонами. К сожалению, в нашем случае обычные понятия фотонов (ТЕ- и ТМ-моды) неприменимы и необходимо всю процедуру квантования строить заново. Для квантования мы предположим, что наша система молекула + наночастица помещена в бесконечно большой сферический резонатор с идеально проводящей стенкой (рис. 2). После этого фотонную моду внутри сферы можно искать в виде разложения по векторным сферическим гармоникам [20]:

$$\mathbf{e}_{mn}(\mathbf{r}) = A_{mn}^L (\mathbf{N}\Psi_{mn}^L + \mathbf{M}\Psi_{mn}^L) + A_{mn}^R (\mathbf{N}\Psi_{mn}^R - \mathbf{M}\Psi_{mn}^R), \quad (8)$$

причём сюда входят комбинации как ТЕ-гармоник, так и ТМ-гармоник, индексы L и R относятся к лево- и правополяризованным плоским волнам в свободном пространстве соответственно с волновыми числами

$$k_L = \frac{k_0 \sqrt{\varepsilon \mu}}{1 - \chi \sqrt{\varepsilon \mu}}, \quad k_R = \frac{k_0 \sqrt{\varepsilon \mu}}{1 + \chi \sqrt{\varepsilon \mu}}.$$

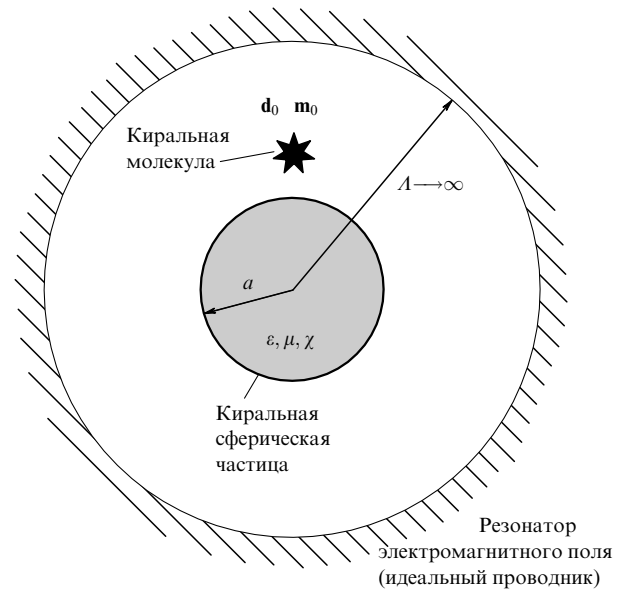


Рис. 2. Геометрия квантования электромагнитного поля в присутствии киральной сферы.

Фотонная мода снаружи частицы ищется в виде комбинации расходящихся и сходящихся сферических ТЕ- и ТМ-волн [20]

$$\mathbf{e}_{mn}(\mathbf{r}) = C_{mn}^{(1)} \mathbf{N}\zeta_{mn}^{(1)} + C_{mn}^{(2)} \mathbf{N}\zeta_{mn}^{(2)} + D_{mn}^{(1)} \mathbf{M}\zeta_{mn}^{(1)} + D_{mn}^{(2)} \mathbf{M}\zeta_{mn}^{(2)}. \quad (9)$$

Применяя граничные условия непрерывности тангенциальных компонент напряжённости полей и нормировку на один фотон во всём пространстве, можно найти явные выражения для всех коэффициентов, входящих в (8) и (9) [18]. Получающееся дисперсионное уравнение имеет два решения, которые соответствуют двум типам фотонов. Мы назовём эти фотоны А- и В-фотонами. При $\chi = 0$ фотоны А-типа сводятся к ТМ-фотонам, а фотоны В-типа — к ТЕ-фотонам. Плотность конечных состояний для фотонов любого типа $\rho(\omega) = \omega/(\pi\hbar c)$, в соответствии с теоремой Куранта [21], не зависит от присутствия частиц конечного объёма.

Используя найденные выражения и записывая матричные элементы перехода молекулы в виде $\mathbf{d}_0 = \langle e | \hat{\mathbf{d}} | g \rangle$ и $-\mathbf{m}_0 = \langle e | \hat{\mathbf{m}} | g \rangle$, скорость спонтанного излучения (7) произвольной киральной молекулы вблизи произвольной биизотропной сферы можно представить в виде суммы скоростей распада на фотоны А- и В-типа. Например, для скорости распада на фотоны типа А имеем

$$\gamma_{eg}^A = \gamma_{eg}^{A,-1} + \gamma_{eg}^{A,1} + \gamma_{eg}^{A,0}, \quad (10)$$

где

$$\gamma_{eg}^{A,-1} = \frac{k_0}{2\hbar r_0^2} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2n+1}{1 + |O_n|^2} \times$$

$$\times \left| (d_{0x} - id_{0y}) (\psi'_n(k_0 r_0) + T_n^A \zeta_n^{(1)'}(k_0 r_0)) - \right.$$

$$\left. - O_n (d_{0y} + id_{0x}) (\psi_n(k_0 r_0) + L_n^A \zeta_n^{(1)}(k_0 r_0)) + \right.$$

$$\left. + O_n (m_{0x} - im_{0y}) (\psi'_n(k_0 r_0) + L_n^A \zeta_n^{(1)'}(k_0 r_0)) - \right.$$

$$\left. - (m_{0y} + im_{0x}) (\psi_n(k_0 r_0) + T_n^A \zeta_n^{(1)}(k_0 r_0)) \right|^2, \quad (11)$$

$$\gamma_{eg}^{A,1} = \frac{k_0}{2\hbar r_0^2} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2n+1}{1+|O_n|^2} \times \\ \times \left| O_n(d_{0y} - id_{0x})(\psi_n(k_0 r_0) + L_n^A \zeta_n^{(1)}(k_0 r_0)) - \right. \\ - (d_{0x} + id_{0y})(\psi_n'(k_0 r_0) + T_n^A \zeta_n^{(1)'}(k_0 r_0)) + \\ + (m_{0y} - im_{0x})(\psi_n(k_0 r_0) + T_n^A \zeta_n^{(1)}(k_0 r_0)) - \\ \left. - O_n(m_{0x} + im_{0y})(\psi_n'(k_0 r_0) + L_n^A \zeta_n^{(1)'}(k_0 r_0)) \right|^2, \quad (12)$$

$$\gamma_{eg}^{A,0} = \frac{2}{\hbar k_0 r_0^4} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{(2n+1)n(n+1)}{1+|O_n|^2} \times \\ \times \left| d_{0z}(\psi_n(k_0 r_0) + T_n^A \zeta_n^{(1)}(k_0 r_0)) + \right. \\ \left. + O_n m_{0z}(\psi_n(k_0 r_0) + L_n^A \zeta_n^{(1)}(k_0 r_0)) \right|^2, \quad (13)$$

T_n^A , L_n^A и O_n — некоторые коэффициенты, которые выражаются через функции Бесселя и зависят только от свойств сферы [18]. Для скорости распада на В-фотоны имеем аналогичные выражения [18].

6. Анализ результатов и иллюстрации

Выражения (11)–(13) фактически исчерпывают задачу о спонтанном излучении произвольной молекулы вблизи киральной сферы произвольного состава и размера. К сожалению, эти выражения несколько громоздки, что затрудняет их понимание и интерпретацию. В наиболее интересном случае наносферы результаты (11)–(13) могут быть упрощены. Однако вместо формального нахождения асимптотик ниже мы рассмотрим спонтанное излучение киральных молекул вблизи киральной нанометачастицы в рамках квазистатического (и квазиклассического) приближения [22]. Как будет ясно, такой, более физический, подход полностью согласуется с точным решением (11)–(13) и позволяет полностью понять физику процессов.

Ближние поля, создаваемые молекулой, которая описывается осциллирующими электрическим и магнитным дипольными моментами с амплитудами \mathbf{d}_0 , $-\mathbf{im}_0$, имеют хорошо известный вид:

$$\mathbf{E}_0 = \frac{3\mathbf{r}(\mathbf{r}\mathbf{d}_0) - r^2\mathbf{d}_0}{r^5}, \quad \mathbf{H}_0 = -\frac{i(3\mathbf{r}(\mathbf{r}\mathbf{m}_0) - r^2\mathbf{m}_0)}{r^5}, \quad (14)$$

где \mathbf{r} — радиус-вектор от центра сферы к точке наблюдения. В (14) и далее фактор монохроматической зависимости от времени опущен.

Ближние поля (14) индуцируют дипольные моменты в наночастице

$$\delta\mathbf{d} = \alpha_{EE}\mathbf{E}_0(\mathbf{r}_0) + \alpha_{EH}\mathbf{H}_0(\mathbf{r}_0), \quad (15)$$

$$\delta\mathbf{m} = \alpha_{HE}\mathbf{E}_0(\mathbf{r}_0) + \alpha_{HH}\mathbf{H}_0(\mathbf{r}_0),$$

где электромагнитные поляризуемости киральной сферы имеют вид

$$\alpha_{EE} = a^3 \frac{(\varepsilon - 1)(\mu + 2) + 2\varepsilon\mu\chi^2}{(\varepsilon + 2)(\mu + 2) - 4\varepsilon\mu\chi^2}, \\ \alpha_{EH} = a^3 \frac{3\chi\varepsilon\mu i}{(\varepsilon + 2)(\mu + 2) - 4\varepsilon\mu\chi^2}, \quad (16)$$

$$\alpha_{HH} = \alpha_{EE}(\varepsilon \leftrightarrow \mu), \quad \alpha_{HE} = -\alpha_{EH}.$$

Если дополнительно предположить, что расстояние между молекулой и наночастицей мало по сравнению с длиной волны, то интенсивность излучения системы частица + молекула описывается выражением

$$\Gamma \propto |\mathbf{d}_0 + \delta\mathbf{d}|^2 + |-\mathbf{im}_0 + \delta\mathbf{m}|^2, \quad (17)$$

в котором интерференция между излучениями электрического и магнитного диполей не возникает из-за малости набега фазы. Подставляя в (17) выражения (15), получим

$$\Gamma \propto \left| \mathbf{d}_0 + \frac{\alpha_{EE}}{r_0^3} (3\mathbf{n}(\mathbf{nd}_0) - \mathbf{d}_0) + \frac{i\alpha_{EH}}{r_0^3} (3\mathbf{n}(\mathbf{nm}_0) - \mathbf{m}_0) \right|^2 + \\ + \left| \mathbf{m}_0 + \frac{i\alpha_{HE}}{r_0^3} (3\mathbf{n}(\mathbf{nd}_0) - \mathbf{d}_0) + \frac{\alpha_{EE}}{r_0^3} (3\mathbf{n}(\mathbf{nm}_0) - \mathbf{m}_0) \right|^2. \quad (18)$$

Если ориентация молекул не фиксированна (как это часто бывает на практике), то по ней надо провести усреднение, в результате которого имеем

$$\Gamma_{\text{eff}} = \frac{4k_0^3 |\mathbf{d}_0|^2}{3\hbar} \left\{ 1 + \frac{2}{r_0^6} |\alpha_{EE} - i\zeta\alpha_{EH}|^2 + |\zeta|^2 + \right. \\ \left. + \frac{2}{r_0^6} |i\alpha_{HE} + \zeta\alpha_{HH}|^2 \right\}, \quad (19)$$

где $\mathbf{m}_0 = \zeta\mathbf{d}_0$.

На рисунке 3 проведено сравнение результатов вычислений в рамках квантовой электродинамики (КЭД) и квазистатического приближения (19). Из рисунка видно, что результаты этой простой теории находятся в полном соответствии с результатами точного КЭД-расчёта (см. (11)–(13)) для наночастиц. Простота интерпретации теории позволяет в явном виде найти условия, при которых излучение киральной молекулы той или иной киральности будет подавлено. Для этого необходимо, чтобы:

1) система имела кирально-плазмонный резонанс

$$(\varepsilon + 2)(\mu + 2) - 4\varepsilon\mu\chi^2 = 0 \quad (20)$$

(это позволяет усилить магнитные поля);

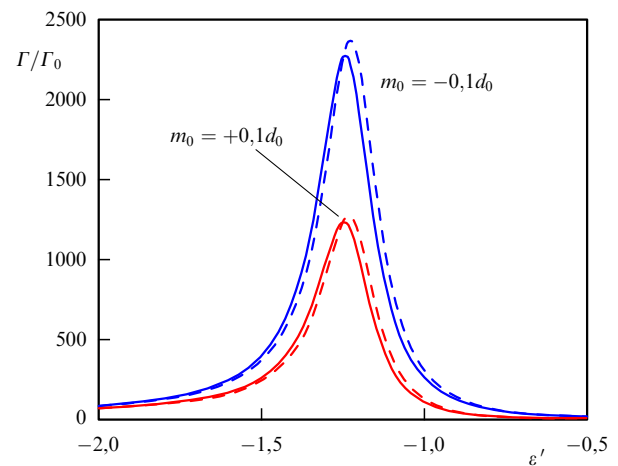


Рис. 3. Сравнение результатов вычисления скорости спонтанного излучения киральной молекулы в рамках КЭД и квазистатического приближения. Молекула расположена вблизи поверхности киральной сферической наночастицы с $\varepsilon = \varepsilon' + i0,1$, $\mu = -1,6$, $\chi = 0,2$ и $k_0 a = 0,1$. Молекула ориентирована по радиусу.

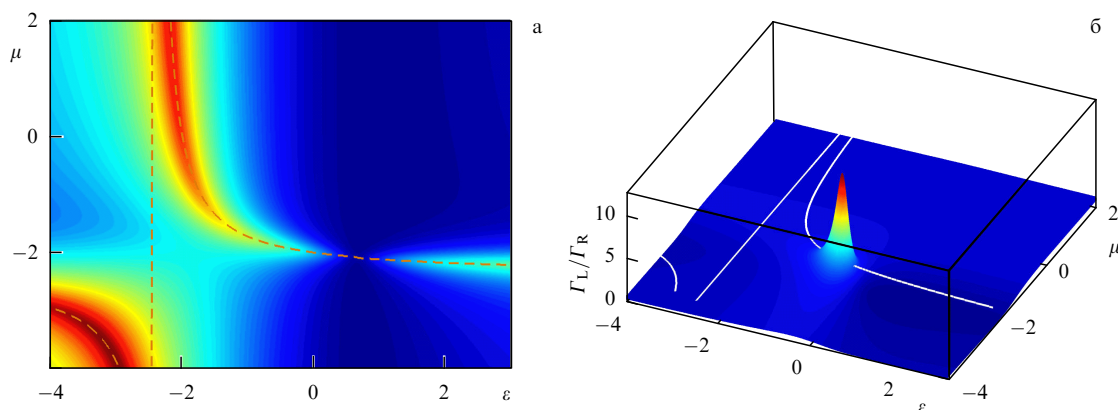


Рис. 4. Скорость спонтанного излучения левой молекулы Γ_L/Γ_0 (а) и её отношение к скорости спонтанного излучения правой молекулы Γ_L/Γ_R (б). Молекулы расположены вблизи киральной наночастицы с $k_0a = 0,1$, $\chi = 0,2$, $\xi = m_{0z}/d_{0z} = 0,1$; $\varepsilon'' = 0,1$.

2) индуцированный в наночастице электрический момент был равен нулю,

$$d_0\alpha_{EE} - im_0\alpha_{EH} = 0. \quad (21)$$

Отсюда следует условие дискриминации

$$\mu^* \rightarrow -\frac{2d_0}{d_0 + 2m_0\chi}, \quad \varepsilon^* \rightarrow -\frac{2m_0}{m_0 + 2d_0\chi}, \quad (22)$$

т.е. при таких μ и ε излучение киральной молекулы будет подавлено. В то же время излучение молекулы с противоположной киральностью ($m_0 \rightarrow -m_0$) вблизи наночастицы с параметрами (22) подавляться не будет!

Для иллюстрации этого эффекта на рис. 4 показаны скорость спонтанного излучения левой киральной молекулы и её отношение к скорости спонтанного излучения правой киральной молекулы. Из рисунка видно, что, действительно, при выполнении условия (22) (в данном случае при $\varepsilon \approx -0,4$ и $\mu \approx -2$ (что соответствует метаматериалу с отрицательным показателем преломления [23]) излучение правой молекулы почти подавлено, тогда как излучение левой молекулы усилено кирально-плазмонным резонансом. В результате скорость распада левой молекулы более чем в 10 раз превышает скорость распада правой молекулы. Заметим, что такие киральные метаматериалы с отрицательным показателем преломления вполне реальны [24].

В том случае, когда нам нужно подавить излучение левых молекул и усилить излучение правых, метаматериал наночастицы, в соответствии с (22), должен иметь положительную диэлектрическую и отрицательную магнитную проницаемости. Такие метаматериалы также вполне возможны [9, 10].

7. Приложения обнаруженных эффектов

После того как мы теоретически показали, что выбором параметров киральной наночастицы можно подавить излучение одних энантиомеров и усилить излучение других, открываются широкие перспективы по применению данного эффекта.

Прежде всего, обнаруженный эффект может использоваться при исследовании с помощью сканирующих микроскопов образцов, в которых один тип энантиомеров доминирует, поэтому обнаружить и подсчитать

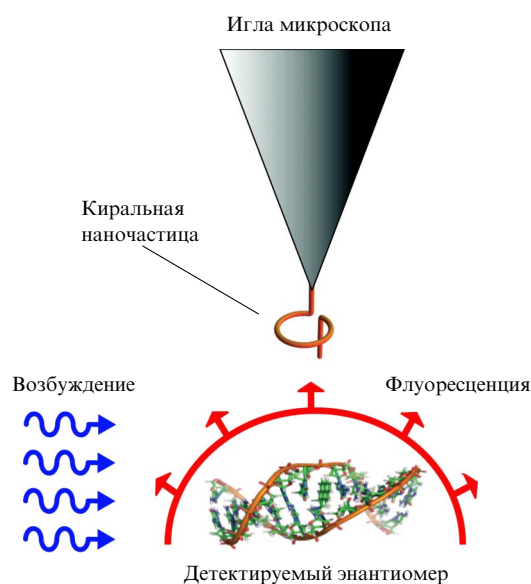


Рис. 5. Обнаружение отдельных молекул с заданной киральностью.

малое количество энантиомера с противоположной киральностью обычными методами не представляется возможным. Однако если на конец иглы сканирующего микроскопа поместить частицу (рис. 5), материал которой выбран в соответствии с условиями (22) так, чтобы подавлялось излучение основной массы ненужных молекул, то в поле зрения микроскопа попадут только искомые молекулы (поиски вневременной жизни, биотеррористические атаки и т.д.).

Ещё более важным направлением применения полученных результатов является чисто оптическое разделение рацемических смесей биомолекул (рис. 6). Такие смеси, в частности, возникают при химическом синтезе лекарств. Однако для корректного воздействия нужен только один определённый энантиомер. Применяемые в настоящее время химические методы разделения сложны и дороги, поэтому разработка чисто оптического метода разделения энантиомеров представляется весьма привлекательной. Полученные выше результаты позволяют, по крайней мере в принципе, сделать это. Принцип работы чисто оптической установки по разделению энантиомеров показан на рис. 6. Синтезированные молекулы тем

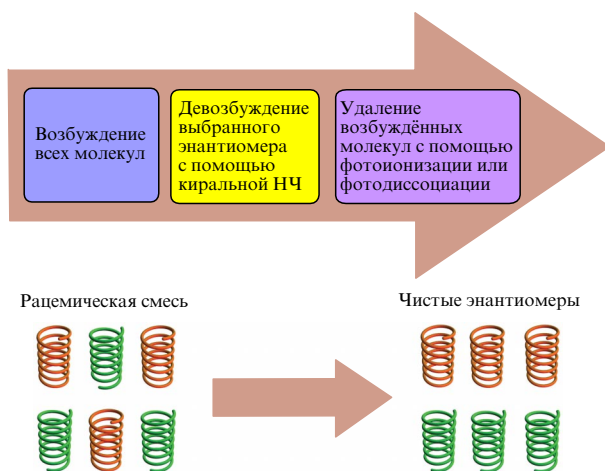


Рис. 6. Разделение рацемических смесей биомолекул.

или иным способом возбуждаются в камере, поверхность которой покрыта наночастицами, соответствующими условию (22). Энантиомеры одного типа (скажем, "правые") быстро переходят в основное состояние, в то время как энантиомеры другого типа ("левые") остаются в возбуждённом состоянии. Применяя ионизирующий импульс излучения, можно электрическим полем удалить ионизированные молекулы, в результате чего в реакционной камере останутся только заданные энантиомеры. Весьма важно, что при данном методе синтеза не происходит загрязнения побочными химическими веществами, необходимыми при разделении химическими методами.

8. Заключение

Таким образом, проблема описания спонтанного излучения киральных молекул вблизи киральной сферы произвольного состава решена аналитически как в рамках КЭД, так и в квазистатическом приближении.

Показано, что если частица, являясь киральной, имеет отрицательный показатель преломления или отрицательную магнитную проницаемость, то излучение правых и левых молекул вблизи неё может существенно различаться. Заметим, что полученные результаты являются общими и не ограничиваются только случаем одной наночастицы. Уже показано, что кластеры киральных нанометачастиц являются даже более перспективными с точки зрения управления излучением энантиомеров [25].

Полученные результаты открывают дорогу к чисто оптическому разделению энантиомеров лекарственных препаратов.

Работа поддержана РФФИ (гранты 11-02-91065, 11-02-92002, 11-02-01272, 12-02-90014, 12-02-90417), БРФФИ (грант Ф12Р-006), Программами Президиума РАН, Фондом развития Центра разработки и коммерциализации новых технологий (Сколково).

Список литературы

- Novotny L, Hecht B *Principles of Nano-Optics* (Cambridge: Cambridge Univ. Press, 2006) [Новотный Л, Хехт Б *Основы нанооптики* (М.: Физматлит, 2009)]
- Климов В *Наноплазмоника* (М.: Физматлит, 2010)
- Климов В В *УФН* **173** 1008 (2003) [Klimov V V *Phys. Usp.* **46** 979 (2003)]
- Kneipp K, Moskovits M, Kneipp H (Eds) *Surface-Enhanced Raman Scattering. Physics and Applications* (Berlin: Springer, 2006)
- Lakowicz J R et al. *J. Phys. D* **36** R240 (2003)
- Manno D et al. *Nanotechnology* **21** 165502 (2010)
- Lakhtakia A, Varadan V K, Varadan V V *J. Phys. D* **23** 481 (1990)
- Klimov V V *Opt. Commun.* **211** 183 (2002)
- Cai W, Shalaev V *Optical Metamaterials: Fundamentals and Applications* (New York: Springer, 2010)
- Noginov M A, Podolskiy V A (Ed.) *Tutorials in Metamaterials* (Boca Raton, FL: Taylor & Francis, 2012)
- Kelvin W T (Lord) *Baltimore Lectures on Molecular Dynamics and the Wave Theory of Light* (London: C.J. Clay and Sons, 1904)
- Hendry E et al. *Nature Nanotechnol.* **5** 783 (2010)
- Govorov A O et al. *Nano Lett.* **10** 1374 (2010)
- Rosenfeld L *Z. Phys.* **52** 161 (1929)
- Barron L D *Molecular Light Scattering and Optical Activity* (Cambridge: Cambridge Univ. Press, 1982)
- Бокуть Б В, Сердюков А Н, Федоров Ф И *Кристаллография* **15** 1002 (1970) [Bokut' B V, Serdyukov A N, Fedorov F I *Sov. Phys. Crystallogr.* **15** 871 (1971)]
- Lindell I V et al. *Electromagnetic Waves in Chiral and Bi-isotropic Media* (Boston: Artech House, 1994)
- Guzatov D V, Klimov V V *Phys. Rev. A* **75** 052901 (2007); physics/0703046
- Fermi E *Rev. Mod. Phys.* **4** 87 (1932)
- Stratton J A *Electromagnetic Theory* (New York: McGraw-Hill, 1941) [Страттон Дж А *Теория электромагнетизма* (М.–Л.: Гостехиздат, 1948)]
- Courant R, Hilbert D *Methoden der mathematischen Physik* (Berlin: J. Springer, 1931) [*Methods of Mathematical Physics* (New York: Interscience Publ., 1989); Курант Р, Гильберт Д *Методы математической физики* Т. 1 (М.–Л.: Гос. техн.-теоретич изд-во, 1933) с. 420, 421]
- Klimov V V, Guzatov D V, Ducloy M *Europhysics Lett.* **97** 47004 (2012)
- Веселаго В Г *УФН* **92** 517 (1967) [Veselago V G *Sov. Phys. Usp.* **10** 509 (1968)]
- Kwon D-H et al. *Opt. Express* **16** 11822 (2008)
- Guzatov D V, Klimov V V, submitted to *New J. Phys.*; arXiv:1203.5393