## ИНДУЦИРОВАННЫЕ ПЕРЕХОДЫ В МОЛЕКУЛАХ ВБЛИЗИ НАНОАНТЕНН ИЗ ПАРАЛЛЕЛЬНЫХ ЦИЛИНДРОВ

## Кучеренко М.Г., Русинов А.П. Центр лазерной и информационной биофизики, Оренбургский государственный университет, г. Оренбург

Управление скоростью молекулярных излучательных И безызлучательных процессов посредством использования плазмонных наноантенн-ретрансляторов вызывает значительный интерес [1-3] в связи с молекулярной электроники активным развитием И наноплазмоники. Характеристики электромагнитного поля в ближней зоне наноантенны существенно изменяются за счет возбуждения в проводнике плазмонных колебаний плотности электронного газа, определение этих характеристик является важной научной задачей.

В данной работе исследована структура поля и рассчитаны вероятности индуцированных переходов молекул, расположенных в окрестности наноантенн-ретрансляторов, в виде нескольких параллельных стержней нанометрового радиуса.

В случае протяженных вдоль оси *z* цилиндрических проводников описание однородного по *z* поля в ближней зоне наноантенны сводится к картине в плоскости (x,y). Результирующее поле представляет собой сумму внешнего электрического поля  $\mathbf{E}_0$  и поля поляризованных стержней [4]. При этом локальные плазмонные колебания в стержнях возбуждаются только компонентой вектора электрического поля, поляризованной в плоскости (x,y):  $\mathbf{E}_0^{\perp}$ . Далее полагаем  $\mathbf{E}_0 \equiv \mathbf{E}_0^{\perp}$ .



Рис.1 – К расчету локального поля металлического наностержня радиусом R в среде с диэлектрической проницаемостью  $\mathcal{E}_{out} = \mathcal{E}_m$ 

Введем вектор  $P(\omega)$  *дипольного момента* единицы длины отдельного нанопровода радиусом *R* соотношением

$$\mathbf{P}(\omega) = \alpha_0(\omega)\mathbf{E}_0$$

где

$$\alpha_0(\omega) = \frac{R^2}{2} \frac{\varepsilon(\omega) - \varepsilon_m}{\varepsilon(\omega) + \varepsilon_m}$$

- поляризуемость единицы длины нанопровода,

$$\varepsilon(\omega) = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega(\omega + i\gamma)}$$

– диэлектрическая проницаемость металла,  $\varepsilon_m$  - диэлектрическая проницаемость внешней среды,  $\omega_p$  и  $\gamma$  – плазменная частота и коэффициент затухания в металле соответственно.

Тогда потенциал поля нанопровода вне его объема находится как

$$\varphi(\mathbf{r}) = -\mathbf{E}_0 \mathbf{r} + 2 \frac{\mathbf{P}(\omega)\mathbf{r}}{r^2},$$

и результирующее поле есть

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}) = -\operatorname{grad} \varphi(\mathbf{r}) = \mathbf{E}_0 - \vec{\nabla} \left( 2 \frac{\mathbf{P}(\omega)\mathbf{r}}{r^2} \right).$$

Для нахождения характеристик ближнего поля систем из нескольких наностержней необходим учет их взаимного влияния друг на друга [5].



Рис.2 – К расчету локального поля двух параллельных металлических наностержней радиусом R в среде с диэлектрической проницаемостью  $\mathcal{E}_m$ 

Так как система из двух нанопроводов симметрична, наведенная поляризация в первом и втором проводе одинакова. Тогда

$$\mathbf{P}_{2}(\omega) = \alpha_{0} \Big( \mathbf{E}_{0} + \ddot{G}(d) \mathbf{P}_{2}(\omega) \Big).$$

Отсюда

$$\mathbf{P}_{2}(\boldsymbol{\omega}) = \left[\mathbf{\ddot{I}} - \boldsymbol{\alpha}_{0} \left(\mathbf{\ddot{G}}(d)\right)\right]^{-1} \boldsymbol{\alpha}_{0} \mathbf{E}_{0} = \mathbf{\ddot{\alpha}}_{2eff} \mathbf{E}_{0},$$

где

$$\ddot{G}(\mathbf{r}) = \frac{1}{r^2} \Big[ 2\mathbf{r} \otimes \mathbf{r} - \mathbf{\ddot{I}} \Big]$$

-диадическая квазистатическая функция Грина (функция влияния точечного дипольного источника на плоскости), представляющая собой тензор второго

ранга. Через  $\ddot{a}_{2eff}$  обозначена эффективная поляризуемость кластера из двух параллельных наностержней

$$\vec{\alpha}_{\text{2eff}} = \left[\vec{\mathbf{I}} - \alpha_0 \left(\vec{G}(d)\right)\right]^{-1} \alpha_0,$$

которая, также, является тензорной величиной.

Потенциал поля системы равен сумме потенциалов внешнего поля и полей от двух наностержней с наведенными дипольными моментами  $\mathbf{P}_2(\omega)$ 

$$\varphi_2(\mathbf{r}) = -\mathbf{E}_0 \mathbf{r} + 2 \left[ \frac{\mathbf{P}_2(\omega)\mathbf{r}_1}{r_1^2} + \frac{\mathbf{P}_2(\omega)\mathbf{r}_2}{r_2^2} \right]$$



Рис. 3 — Структура поля  $\mathbf{E}(\mathbf{r})$  вблизи двух нанопроводов и его относительная амплитуда  $|\mathbf{E}(\mathbf{r})|/\mathbf{E}_0$  при различной ориентации вектора  $\mathbf{E}_0$  относительно оси системы

Рассматриваемая система стержней обладает выраженной анизотропией по отношению к ориентации вектора  $\mathbf{E}_0$ . Как видно из рис. 3, при продольной ориентации вектора внешнего поля в промежутке между наностержнями результирующее поле усиливается, а при поперечной – ослабляется.



Рис. 4 –Логарифм относительной вероятности перехода  $(\mathbf{p}_{M}\mathbf{E}(\mathbf{r}))^{2}/(\mathbf{p}_{M}\mathbf{E}_{0})^{2}$  в молекуле, расположенной вблизи двух нанопроводов при различных ориентациях векторов **E**<sub>0</sub> и **p**<sub>M</sub>

Для расчета вероятностей индуцированных переходов в молекуле находящейся в ближней зоне антенны необходимо учитывать ориентацию ее дипольного момента перехода как относительно ориентации внешнего поля, так и относительно оси антенной пары. Наиболее показателен случай совпадающей ориентации векторов  $\mathbf{E}_0 \Box \mathbf{p}_M$ , так как при их угловом рассогласовании вероятность индуцированного перехода существенно уменьшается. Как показано на рис. 4 при  $\mathbf{E}_0 \Box \mathbf{d}$  вдоль оси нанокластера вероятность индуцированных переходов увеличивается, а при  $\mathbf{E}_0 \perp \mathbf{d}$  – уменьшается.

определяются ближнего Аналогично характеристики поля ДЛЯ наноантенны ИЗ большего числа бесконечно длинных параллельных проводников, при условии их регулярного расположения: для трех стержней в форме правильного треугольника, для четырех – квадрата, для шести – правильного шестиугольника и т.д.



Рис. 5 — К расчету локального поля кластера из трех и четырех металлических наностержней радиусом R в среде с диэлектрической проницаемостью  $\varepsilon_m$ 

В силу симметрии рассматриваемых систем наведенная поляризация каждого стержня одинакова, и определятся суммарным действием внешнего поля и всех остальных стержней. Таким образом

$$\mathbf{P}_{N}(\boldsymbol{\omega}) = \boldsymbol{\alpha}_{0} \left( \mathbf{E}_{0} + \sum_{i=2}^{N} \vec{G}(\mathbf{d}_{1i}) \mathbf{P}_{N}(\boldsymbol{\omega}) \right),$$

где  $\mathbf{d}_{1i}$  - расстояние между выделенным и *i* стержнем, *N* - общее число стержней.

Тогда эффективная поляризуемость кластера из *N* параллельных наностержней и двумерный дипольный момент каждого поляризованного стержня запишется в виде

$$\vec{\alpha}_{Neff} = \left[\vec{\mathbf{I}} - \alpha_0 \sum_{i=2}^{N} \vec{G}(\mathbf{d}_{1i})\right]^{-1} \alpha_0, \ \mathbf{P}_N(\omega) = \vec{\alpha}_{Neff} \mathbf{E}_0.$$

Потенциал создаваемого поля

$$\varphi_N(\mathbf{r}) = -\mathbf{E}_0 \mathbf{r} + 2 \sum_{i=1}^N \frac{\mathbf{P}_N(\omega) \mathbf{r}_i}{r_i^2}$$

а напряженность результирующего поля находится стандартным образом  $\mathbf{E}_N(\mathbf{r}) = -\operatorname{grad} \varphi_N(\mathbf{r})$ .



Рис. 6 – Структура поля  $\mathbf{E}(\mathbf{r})$  вблизи кластера из трех наностержней и его относительная амплитуда  $|\mathbf{E}(\mathbf{r})|/E_0$  при различной ориентации вектора  $\mathbf{E}_0$ 

Из симметрии рассматриваемых систем следует, что при изменении ориентации вектора  $\mathbf{E}_0$  относительно наноантенны на угол  $\pi/N$ , где N – число элементов антенны, структура поля повторяется. Более того, структура поля при ориентации вектора  $\mathbf{E}_0$  в диапазоне углов от 0 до  $\pi/2N$  и от  $\pi/2N$  до  $\pi/N$  является зеркально-симметричной.



Рис. 7 –Логарифм относительной вероятности перехода  $(\mathbf{p}_{M}\mathbf{E}(\mathbf{r}))^{2}/(\mathbf{p}_{M}\mathbf{E}_{0})^{2}$  в молекуле, расположенной вблизи трех нанопроводов при различных ориентациях векторов **E**<sub>0</sub> и **p**<sub>M</sub>

Как видно из рис. 6-7 уменьшение амплитуды поля и вероятности перехода в молекуле в большей степени проявляют себя во внутренней области кластера и имеют место при любых ориентациях вектора  $\mathbf{E}_0$ . При этом можно отметить, что взаимное влияние наностержней существенно для достаточно тесных кластеров  $d/R \approx 1 \div 4$ . Так, например, при  $d \sim 10R$  поле вблизи каждого стержня уже практически не отличается от поля уединенного нанопровода.



Рис. 8 — Структура поля  $\mathbf{E}(\mathbf{r})$  вблизи кластера из четырех наностержней и его относительная амплитуда  $|\mathbf{E}(\mathbf{r})|/E_0$  при различной ориентации вектора  $\mathbf{E}_0$ 



Рис. 9 –Логарифм относительной вероятности перехода  $(\mathbf{p}_{M}\mathbf{E}(\mathbf{r}))^{2}/(\mathbf{p}_{M}\mathbf{E}_{0})^{2}$  в молекуле, находящейся в ближнем поле четырех нанопроводов при различных ориентациях векторов **E**<sub>0</sub> и **p**<sub>M</sub>

С увеличением числа нанопроводов в системе N=4 (рис. 8-9) и N=6 (рис. 10-11) отмеченный выше эффект ослабления поля внутри кластера становится еще более выраженным, представляя собой своеобразную экранировку проводниками внешнего поля. При этом степень экранировки растет с числа элементов *N*. Так, для шестиэлементной системы увеличением внутреннее распределение поля практически не чувствительно к ориентации **E**<sub>0</sub> . В тесных кластерах с большим N, помимо наиболее выраженного эффекта ослабления внутреннего поля, можно также заметить. что структура результирующего поля вне кластера становится аналогичной структуре поля одиночного нанопровода с диаметром порядка поперечных размеров пучка наностержней.



Рис. 10 — Структура поля  $\mathbf{E}(\mathbf{r})$  вблизи кластера из шести наностержней и его относительная амплитуда  $|\mathbf{E}(\mathbf{r})|/E_0$  при различной ориентации поля  $\mathbf{E}_0$ 



Рис. 11 –Логарифм относительной вероятности перехода  $(\mathbf{p}_{M}\mathbf{E}(\mathbf{r}))^{2}/(\mathbf{p}_{M}\mathbf{E}_{0})^{2}$  в молекуле, находящейся в ближнем поле системы из шести наностержней при различных ориентациях векторов **E**<sub>0</sub> и **p**<sub>M</sub>

Данный подход также можно применить и при расчете поляризационных характеристик для регулярных бесконечно протяженных систем их параллельных наностержней, например, для бесконечной цепочки или решетки с различной упаковкой наностержней.

Проведенные расчеты структуры поля и вероятностей индуцированных переходов молекул вблизи составных наноантенн-ретрансляторов могут быть использованы в дальнейшем при проектировании устройств молекулярной электроники и наноплазмоники.

Работа выполнена при поддержке РФФИ и Правительства Оренбургской области (гранты № 16-42-560671р\_а и № 15-08-04132 А)

## Список литературы

1. Rechberger, W. Optical properties of two interacting gold nanoparticle/W. Rechberger A. Hohenau, A. Leitner, J.R. Krenn, B. Lamprecht, F.R. Aussenegg // Optics Communications. -2003. -V.220. -P. 137-141.

2. Климов, В.В. Наноплазмоника /В.В. Климов // Москва, изд. Физматлит .- 2009. С. 62-64.

3. Кучеренко, М.Г. Возможности улучшения характеристик сканирующего ближнепольного оптического микроскопа за счет плазмоннорезонансного увеличения скорости безызлучательного переноса энергии / М.Г. Кучеренко, Д.А. Кислов, Т.М. Чмерева // Российские нанотехнологии. – 2012. -Т. 7. - № 3-4 С. 111-117.

4. Ландау, Л.Д. Электродинамика сплошных сред. Т. 8 / Л.Д. Ландау, Е.М. Лифшиц // Москва, изд. Физматлит . 2003. – 656 с. 5. Кучеренко, М.Г. Тензорное представление динамической поляризуемости двухчастичного нанокластера в приближении точечных диполей / М.Г. Кучеренко // Матер. Всеросс. научно-метод. конфер. «Университетский комплекс как региональный центр образования, науки и культуры». Оренбургский гос. ун-т. – Оренбург: ООО ИПК «Университет», 2014. - 4014 с. Секция 6 «Вопросы фундаментальной, прикладной физики и физического образования». - С. 1412-1421.