

# Изменение спектра резонансной флуоресценции двухуровневого атома в ближнем поле плазмонной наночастицы

Е. С. Андрианов, А. А. Пухов, А. П. Виноградов, А. В. Дорофеев, А. А. Лисянский<sup>+</sup>

Институт теоретической и прикладной электродинамики РАН, 125412 Москва, Россия

Московский физико-технический институт, 141700 Долгопрудный, Россия

<sup>+</sup>Department of Physics, Queens College of the City University of New York, Queens, NY 11367, USA

Поступила в редакцию 11 февраля 2013 г.

После переработки 4 марта 2013 г.

Рассматривается спектр резонансной флуоресценции атома, расположенного в ближнем поле плазмонной наночастицы. Показано, что при приближении атома к плазмонной наночастице в его молловском триплете исчезает высокочастотный пик. При этом спектр принимает форму линии фано-резонанса. При дальнейшем сближении исчезает и низкочастотный пик. На малых расстояниях, когда взаимодействие атома с наночастицей становится много больше, чем с внешним полем, спектр представляет собой лоренцевскую линию, ширина которой пропорциональна квадрату константы взаимодействия между наночастицей и атомом.

DOI: 10.7868/S0370274X13080043

**1. Введение.** В последнее время в связи с активным развитием плазмоники [1–5] большой интерес вызывает задача о влиянии взаимодействия двухуровневых атомов и плазмонных структур на их оптические свойства. В качестве примеров можно упомянуть дипольный нанолазер [6, 7], спазер [8, 9], наноразмерные источники света [10, 11], активные метаматериалы [12–19]. Отправной точкой для этих исследований послужила статья Перселла [20], положившая начало изучению влияния окружения на спонтанный переход атома (см. [21] и приведенные там ссылки). В рамках подхода Перселла рассмотрено, в частности, влияние наноструктур на спектр резонансной флуоресценции атомов [22, 23].

Спектр резонансной флуоресценции (молловский триплет) впервые был экспериментально получен в работах [24, 25], а теоретически рассчитан в [26, 27]. Данный триплет описывается двумя параметрами: шириной линий и константой взаимодействия атома с полем (частотой Раби). Влияние плазмонной наночастицы (НЧ) на спектр резонансной флуоресценции двухуровневых атомов было впервые рассмотрено в работе [23]. В ней было учтено как изменение поля излучения атома за счет присутствия плазмонной НЧ, так и изменение локального поля вблизи НЧ за счет ее переизлучения (перенормировка частоты Раби).

Однако при таком подходе не учитываются фазы колебаний дипольных моментов ни атома, ни

НЧ. Возникающая интерференция может привести к нелоренцевской форме спектра. Спектр флуоресценции может приобрести форму так называемого фано-резонанса (о фано-резонансе см. [28]). Стоит также отметить, что в случае малых НЧ ( $\leq 20$  нм) переизлучается лишь малая часть энергии внешнего поля, основная же ее часть приходится на джоулевы потери в металле [29] (при этом характерное время безызлучательного затухания НЧ  $\tau_a \sim 10^{-14}$  с [30]). Последнее приводит к тому, что возбуждаемое в НЧ число плазмонов (квантов энергии ближнего поля НЧ [31]) становится малым или сравнимым с единицей. В таком случае необходимо учитывать квантовые флуктуации ближнего поля НЧ.

В данной работе последовательно учтено влияние квантовых флуктуаций и корреляций на динамику НЧ и двухуровневого атома во внешнем оптическом поле в приближении малого числа плазмонов. Показано, что при сближении атома и НЧ вследствие фано-резонанса форма молловского триплета сначала становится асимметричной. Затем пропадают боковые максимумы. В итоге триплет вырождается в единичную лоренцевскую линию.

**2. Динамика атома в поле внешней монохроматической волны. Спектр резонансной флуоресценции.** Рассмотрим взаимодействие одноуровневого атома с внешней монохроматической волной  $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{E}_0 \cos \nu t$ . Гамильтониан системы имеет следующий вид [32–34]:

$$\hat{H} = \hat{H}_{\text{TLS}} + \hat{H}_{\text{TLS}-w}, \quad (1)$$

где  $\hat{H}_{\text{TLS}} = \hbar\omega_{\text{TLS}}\hat{\sigma}^\dagger\hat{\sigma}$  описывает гамильтониан двухуровневого атома, а оператор  $\hat{V}_{\text{TLS}-w} = -\hat{\mathbf{d}}_{\text{TLS}}\mathbf{E}$  определяет взаимодействие между двухуровневым атомом и полем внешней волны. Оператор дипольного момента атома равен  $\hat{\mathbf{d}}_{\text{TLS}} = \mu_{\text{TLS}}\mathbf{e}_{\text{tls}}[\hat{\sigma}(t) + \hat{\sigma}^\dagger(t)]$ , где  $\hat{\sigma} = |g\rangle\langle e|$  – оператор перехода между возбужденным ( $|e\rangle$ ) и основным ( $|g\rangle$ ) состояниями атома,  $\mu_{\text{TLS}} = \langle e|er|g\rangle$  – величина дипольного перехода, а  $\mathbf{e}_{\text{tls}}$  – единичный вектор, определяющий направление дипольного момента. Для простоты будем полагать, что частота внешнего поля совпадает с частотой атомного перехода ( $\omega_{\text{TLS}} = \nu$ ). Замена  $\hat{\sigma} = \hat{\sigma} \exp(i\omega_a t)$  и пренебрежение антирезонансными членами (приближение вращающейся волны [35]) дают следующее выражение для гамильтониана взаимодействия:  $\hat{V} = \hbar\Omega(\hat{\sigma}^\dagger + \hat{\sigma})/2$ , где частота Раби  $\Omega = -\mathbf{E}\mu_{\text{TLS}}/\hbar$ .

Процесс распада атома можно описать путем введения резервуара, который представляет собой набор бозонных мод, взаимодействующих с атомом (например, фононов), и последующего его исключения [36]. В результате динамика атома может быть описана следующими оптическими уравнениями Блоха [34]:

$$\dot{\hat{D}} = i\Omega(\hat{\sigma} - \hat{\sigma}^\dagger) - 2(\hat{D} + 1)/\tau_\sigma + \hat{F}_D(t), \quad (2)$$

$$\dot{\hat{\sigma}} = -\hat{\sigma}/\tau_\sigma + i\Omega\hat{D}/2 + \hat{F}_\sigma(t), \quad (3)$$

$$\dot{\hat{\sigma}}^\dagger = -\hat{\sigma}^\dagger/\tau_\sigma - i\Omega\hat{D}/2 + \hat{F}_\sigma^\dagger(t), \quad (4)$$

где оператор  $\hat{D} = |e\rangle\langle e| - |g\rangle\langle g|$  описывает разность населенностей уровней атома,  $\tau_\sigma$  описывает релаксацию атома, а операторы  $\hat{F}_D(t)$  и  $\hat{F}_\sigma(t)$  – марковские шумы. Последние имеют нулевые средние,  $\langle \hat{F}_D(t) \rangle = \langle \hat{F}_\sigma(t) \rangle = 0$ , и дельта-коррелированы,  $\langle \hat{F}_\sigma(t)\hat{F}_\sigma^\dagger(t') \rangle = (2/\tau_\sigma)\delta(t-t')$ ,  $\langle \hat{F}_D(t)\hat{F}_D(t') \rangle = [4(1 + \langle \hat{D} \rangle)/\tau_\sigma]\delta(t-t')$  [34].

Спектр атома может быть найден из системы (2)–(4) с помощью квантовой теоремы регрессии [26]. Сформулируем ее в наиболее удобном для дальнейшего изложения виде [32, 37]. Пусть дан конечный набор операторов  $\hat{X}_1, \hat{X}_2, \dots, \hat{X}_n$  некоторой системы, которая взаимодействует с резервуаром таким образом, что шумы в системе – марковские дельта-коррелированные. Динамика системы описывается линейными уравнениями вида

$$\dot{\hat{X}}_i = M_{ij}(t)\hat{X}_j + \xi_i + \hat{F}_i(t), \quad (5)$$

где матрица  $M_{ij}$  и свободный член  $\xi_i$  зависят от свойств системы, а оператор шума  $\hat{F}_i(t)$   $\delta$ -коррелирован:  $\langle \hat{F}_i(t)\hat{F}_j^\dagger(t') \rangle = 2D_{ij}\delta(t-t')$ .

Тогда (утверждение теоремы) средние значения двухвременных корреляционных операторов  $\langle \hat{X}_i(t + \tau)\hat{X}_j(t) \rangle$  подчиняются следующей системе уравнений:

$$\frac{\partial \langle \hat{X}_i(t + \tau)\hat{X}_j(t) \rangle}{\partial \tau} = M_{ik}(\tau)\langle \hat{X}_k(t + \tau)\hat{X}_j(t) \rangle + \xi_i \langle \hat{X}_j(t) \rangle. \quad (6)$$

Система уравнений (2)–(4) является линейной. Это позволяет сразу применить квантовую теорему регрессии и получить выражение для спектра излучения [33]:

$$S(\mathbf{r}, \omega) = \frac{I_0(\mathbf{r})}{4\pi} \left[ \frac{\Omega^2}{(2/\tau_\sigma)^2 + 2\Omega^2} \right] \times [s_1(\omega) + s_2(\omega) + s_3(\omega) + s_4(\omega)]. \quad (7)$$

Здесь  $I_0(\mathbf{r}) = \left( \frac{\omega_{\text{TLS}}^2 |\mu_{\text{TLS}} \sin \eta|}{c^2 |\mathbf{r}|} \right)^2$  определяет зависимость спектра от точки наблюдения ( $\eta$  – угол между осью  $z$  и диполем, расположенным в плоскости  $(xz)$ ,  $\mathbf{r}$  – радиус-вектор от диполя к точке наблюдения), а частотная зависимость определяется следующими четырьмя слагаемыми:

$$S_1(\omega) = \frac{4\pi(2/\tau_\sigma)^2}{(2/\tau_\sigma)^2 + 2\Omega^2} \delta(\omega_{\text{TLS}} - \omega), \quad (8)$$

$$S_2(\omega) = \frac{(2/\tau_\sigma)^2}{(\omega_{\text{TLS}} - \omega)^2 + (1/\tau_\sigma)^2}, \quad (9)$$

$$S_3(\omega) = \frac{A_+}{(\omega_{\text{TLS}} + \mu - \omega)^2 + (3/2\tau_\sigma)^2}, \quad (10)$$

$$S_4(\omega) = \frac{A_-}{(\omega_{\text{TLS}} - \mu - \omega)^2 + (3/2\tau_\sigma)^2}, \quad (11)$$

где  $\mu = (\Omega^2 - 1/4\tau_\sigma^2)^{1/2}$ ,  $A_\pm = 3P/2\tau_\sigma \pm Q(\omega_{\text{TLS}} \pm \mu - \omega)$ ,  $P = [2\Omega^2 - (2/\tau_\sigma)^2]/[2\Omega^2 + (2/\tau_\sigma)^2]$ ,  $Q = [10\Omega^2 - (1/\tau_\sigma)]/2\mu\tau_\sigma[10\Omega^2 + (2/\tau_\sigma)^2]$  [33]. Видно, что форма спектра зависит от интенсивности внешнего поля. При малой интенсивности преобладает рэлеевское рассеяние (слагаемое  $s_1(\omega)$ ), которое в случае строго монохроматического внешнего поля имеет вид  $\delta$ -функции (когерентный вклад). При большой же интенсивности поля форма спектра имеет вид одной лоренцевской линии с центральным пиком (слагаемое  $s_2(\omega)$ ) на частоте внешнего поля и двух лоренцевских линий (слагаемые  $s_3(\omega)$  и  $s_4(\omega)$ ), отстоящих от центральной в пределе большого поля на частоту Раби, ширины которых определяются затуханием в атоме (молловский триплет).

Далее нас будет интересовать изменение формы данного спектра в том случае, когда рядом с атомом

расположена металлическая НЧ. Поэтому в гамильтониане (1) будут учтены члены, ответственные за динамику ближнего поля НЧ.

**3. Уравнения Гейзенберга–Ланжевена для взаимодействующих НЧ и двухуровневой системы во внешнем поле.** Перейдем к рассмотрению влияния наноструктуры, например металлической НЧ, на спектр резонансной флуоресценции атома. Будем считать, что расстояние между атомом и НЧ  $r$  таково, что  $kr \ll 1$ , так что их взаимодействие является ближнепольным взаимодействием двух диполей, а частота перехода атома совпадает с частотой плазмонного резонанса дипольной моды в НЧ. Для описания квантовой динамики НЧ и двухуровневого атома во внешнем поле используется модельный гамильтониан вида [12, 13, 31, 38]

$$\hat{H} = \hat{H}_{\text{NP}} + \hat{H}_{\text{TLS}} + \hat{V}_{\text{TLS-NP}} + \hat{V}_{\text{TLS-w}} + \hat{V}_{\text{NP-w}}, \quad (12)$$

где  $\hat{H}_{\text{NP}} = \hbar\omega_{\text{SP}}\hat{a}^+\hat{a}$  описывает гамильтониан НЧ на частоте плазмонного резонанса  $\omega_{\text{SP}}$ ,  $\hat{a}^+$  и  $\hat{a}$  – бозе-операторы рождения и уничтожения дипольного поверхностного плазмона [5, 8, 35], операторы  $\hat{V}_{\text{NP-w}} = -\hat{\mathbf{d}}_{\text{NP}}\hat{\mathbf{E}}$  и  $\hat{V}_{\text{TLS-NP}} = -\mathbf{d}_{\text{TLS}}\mathbf{E}_{\text{NP}}$  определяют взаимодействие между НЧ и внешней монохроматической волной и двухуровневым атомом соответственно.

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

$$\ddot{\mathbf{d}}_{\text{NP}} + \omega_{\text{SP}}^2\mathbf{d}_{\text{NP}} = 0. \quad (13)$$

Введем бозе-операторы рождения ( $\hat{a}^+(t)$ ) и уничтожения ( $\hat{a}(t)$ ) дипольного поверхностного плазмона, возбужденного в НЧ, удовлетворяющие коммутационному соотношению  $[\hat{a}(t), \hat{a}^+(t)] = 1$ . При этом оператор дипольного момента запишется как

$$\hat{\mathbf{d}}_{\text{NP}} = \tilde{\boldsymbol{\mu}}_{\text{NP}}(\hat{a} + \hat{a}^+)/\sqrt{2}, \quad (14)$$

а гамильтониан гармонического осциллятора примет вид  $\hat{H}_{\text{SP}} = \hbar\omega_{\text{SP}}\hat{a}^+\hat{a}$ . Для того чтобы определить величину  $\tilde{\boldsymbol{\mu}}_{\text{NP}}$ , сравним энергию кванта и энергию одного плазмона:

$$\hbar\omega_{\text{SP}} = \frac{1}{8\pi} \int_V \frac{\partial[\omega \text{Re} \varepsilon(\omega)]}{\partial\omega} \Big|_{\omega_{\text{SP}}} \mathbf{E}_{\text{NP}} \mathbf{E}_{\text{NP}}^* dV. \quad (15)$$

В случае сферической НЧ электрическое поле внутри нее  $\mathbf{E}_{\text{in}} = -\tilde{\boldsymbol{\mu}}_{\text{NP}}/r_{\text{NP}}^3$ , а поле снаружи  $\mathbf{E}_{\text{out}} = -\boldsymbol{\mu}_{\text{NP}}/r^3 + 3(\tilde{\boldsymbol{\mu}}_{\text{NP}} \cdot \mathbf{r})\mathbf{r}/r^5$ . Примем во внимание, что

$$\frac{1}{8\pi} \int_V \frac{\partial[\omega \text{Re} \varepsilon(\omega)]}{\partial\omega} \Big|_{\omega_{\text{SP}}} \mathbf{E}_{\text{NP}} \cdot \mathbf{E}_{\text{NP}}^* dV =$$

$$= \frac{1}{8\pi} \left\{ \int \frac{\partial[\text{Re} \varepsilon(\omega)]}{\partial\omega} \Big|_{\omega_{\text{SP}}} \mathbf{E}_{\text{NP}} \cdot \mathbf{E}_{\text{NP}}^* dV + \int_V \text{Re} \varepsilon(\omega) \Big|_{\omega_{\text{SP}}} \mathbf{E}_{\text{NP}} \cdot \mathbf{E}_{\text{NP}}^* dV \right\}. \quad (16)$$

Учтем, что в силу уравнения Лапласа,  $\nabla[\text{Re} \varepsilon(\omega_{\text{SP}})\nabla\varphi] = 0$ , и граничных условий  $\varepsilon_{\text{in}} \frac{\partial\varphi_{\text{in}}}{\partial\mathbf{r}} = \varepsilon_{\text{out}} \frac{\partial\varphi_{\text{out}}}{\partial\mathbf{r}}$  второе слагаемое в скобках обращается в нуль:

$$\begin{aligned} & \int_V \text{Re} \varepsilon_{\text{NP}}(\omega) \Big|_{\omega_{\text{SP}}} \mathbf{E}_{\text{NP}} \cdot \mathbf{E}_{\text{NP}}^* dV = \\ & = \int_V \text{Re} \varepsilon_{\text{NP}}(\omega) \Big|_{\omega_{\text{SP}}} |\nabla\varphi|^2 dV = \\ & = \left( \int_{V_{\text{in}}} dV_{\text{in}} + \int_{V_{\text{out}}} dV_{\text{out}} \right) \varphi^* \nabla[\text{Re} \varepsilon_{\text{NP}}(\omega)\nabla\varphi] \Big|_{\omega_{\text{SP}}} + \\ & + \int_{\partial V} \varphi^* \left( \varepsilon_{\text{in}} \frac{\partial\varphi_{\text{in}}}{\partial\mathbf{r}} - \varepsilon_{\text{out}} \frac{\partial\varphi_{\text{out}}}{\partial\mathbf{r}} \right) \mathbf{n} = 0. \quad (17) \end{aligned}$$

Кроме того, будем считать, что вне НЧ среда не обладает дисперсией, так что  $\partial\varepsilon_{\text{out}}/\partial\omega = 0$ . В результате получим следующее выражение для энергии плазмона:

$$\begin{aligned} W_{\text{NP}} &= \frac{1}{8\pi} \int_{V_{\text{in}}} \omega \frac{\partial \text{Re} \varepsilon_{\text{NP}}(\omega)}{\partial\omega} \Big|_{\omega_{\text{SP}}} \mathbf{E}_{\text{NP}} \cdot \mathbf{E}_{\text{NP}}^* dV = \\ &= \frac{|\tilde{\boldsymbol{\mu}}_{\text{NP}}|^2}{6r_{\text{NP}}^3} \omega \frac{\partial \text{Re} \varepsilon_{\text{NP}}(\omega)}{\partial\omega} \Big|_{\omega_{\text{SP}}}. \quad (18) \end{aligned}$$

В итоге имеем

$$\hbar\omega_{\text{SP}} = \frac{|\tilde{\boldsymbol{\mu}}_{\text{NP}}|^2}{6r_{\text{NP}}^3} \omega_{\text{SP}} \frac{\partial \text{Re} \varepsilon_{\text{NP}}(\omega)}{\partial\omega} \Big|_{\omega_{\text{SP}}}, \quad (19)$$

откуда  $\tilde{\boldsymbol{\mu}}_{\text{NP}} = \sqrt{6\hbar r_{\text{NP}}^3 / (\partial \text{Re} \varepsilon_{\text{NP}} / \partial\omega)} \mathbf{e}_{\text{NP}}$ . Для удобства обозначим  $\boldsymbol{\mu}_{\text{NP}} = \tilde{\boldsymbol{\mu}}_{\text{NP}}/\sqrt{2}$ . Таким образом, оператор дипольного момента НЧ есть  $\hat{\mathbf{d}}_{\text{NP}} = \boldsymbol{\mu}_{\text{NP}}(\hat{a} + \hat{a}^\dagger)$ , где  $\boldsymbol{\mu}_{\text{NP}} = \sqrt{3\hbar r_{\text{NP}}^3 / (\partial \text{Re} \varepsilon_{\text{NP}} / \partial\omega)} \mathbf{e}_{\text{NP}}$  (о процедуре квантования см. также [31]).

Итак  $\hat{V}_{\text{TLS-NP}} = \hbar\Omega_{\text{R}}(\hat{a}^\dagger + \hat{a})(\hat{\sigma}^\dagger + \hat{\sigma})$ , где частота Раби взаимодействия между НЧ и двухуровневым атомом  $\Omega_{\text{R}} = [\boldsymbol{\mu}_{\text{NP}}\boldsymbol{\mu}_{\text{TLS}} - 3(\boldsymbol{\mu}_{\text{TLS}} \cdot \mathbf{e}_r)(\boldsymbol{\mu}_{\text{NP}} \cdot \mathbf{e}_r)]/\hbar r^3$ ,  $\mathbf{e}_r$  – единичный вектор  $\mathbf{r}/r$ .

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  $\hat{a}(t)$  и  $\hat{\sigma}(t)$  – медленно меняющиеся амплитуды. Пренебрегая быстро осциллирующими членами  $\square \exp(\pm 2i\omega t)$  (приближение вращающейся волны [35]), оператор

взаимодействия  $\hat{V}_{\text{TLS-NP}}$  можно записать в виде гамильтониана Джайнса–Каммингса [33]:

$$\hat{V}_{\text{TLS-NP}} = \hbar\Omega_{\text{R}}(\hat{a}^\dagger\hat{\sigma} + \hat{\sigma}^\dagger\hat{a}). \quad (20)$$

Пусть дипольные моменты двухуровневого атома и НЧ коллинеарны и направлены параллельно оси  $x$ . Тогда взаимодействие между НЧ и полем внешней волны примет вид

$$\hat{V}_{\text{NP-w}} = \alpha\hbar\Omega(\hat{a}^+ + \hat{a}), \quad (21)$$

где  $\alpha = |\boldsymbol{\mu}|_{\text{NP}}/|\boldsymbol{\mu}|_{\text{TLS}}$ .

Затухание дипольного момента НЧ может быть описано аналогично затуханию дипольного момента в атоме [39]. Исходя из гамильтониана (4) получаем следующие уравнения движения, описывающие динамику средних значений операторов:

$$\langle\hat{D}\rangle = 2i\Omega_{\text{R}}(\langle\hat{a}^+\hat{\sigma}\rangle - \langle\hat{\sigma}^+\hat{a}\rangle) + 2i\Omega(\langle\hat{\sigma}\rangle - \langle\hat{\sigma}^+\rangle) - 2(\langle\hat{D}\rangle + 1)/\tau_{\sigma}, \quad (22)$$

$$\langle\hat{\sigma}\rangle = -\langle\hat{\sigma}\rangle/\tau_{\sigma} + i\Omega_{\text{R}}\langle\hat{a}\hat{D}\rangle + i\Omega\langle\hat{D}\rangle, \quad (23)$$

$$\langle\hat{\sigma}^+\rangle = -\langle\hat{\sigma}^+\rangle/\tau_{\sigma} - i\Omega_{\text{R}}\langle\hat{a}^+\hat{D}\rangle - i\Omega\langle\hat{D}\rangle, \quad (24)$$

$$\langle\hat{a}\rangle = -\langle\hat{a}\rangle/\tau_a - i\Omega_{\text{R}}\langle\hat{\sigma}\rangle - i\alpha\Omega, \quad (25)$$

$$\langle\hat{a}^+\rangle = -\langle\hat{a}^+\rangle/\tau_a + i\Omega_{\text{R}}\langle\hat{\sigma}^+\rangle - i\alpha\Omega. \quad (26)$$

В уравнениях (22)–(26) присутствуют средние от произведений операторов. Пользуясь гамильтонианом (7), мы теперь можем записать уравнения на эти произведения операторов. Однако в них появятся средние от произведений трех и четырех операторов и т.д. Таким образом, получается бесконечная цепочка уравнений на средние значения.

Как отмечалось во введении, из-за больших джоулевых потерь в металлической НЧ ( $\tau_a \sim 10^{-14}$  с, а  $\Omega \ll \tau_a^{-1}$ ) число возбуждаемых внешним полем плазмонов меньше единицы,  $\langle\hat{a}^+\hat{a}\rangle \sim (\alpha\Omega\tau_a)^2 \leq 1$ . Следовательно, средние значения произведений операторов, в которых присутствуют операторы рождения или уничтожения плазмонов во второй степени и выше (например,  $\langle\hat{\sigma}^+\hat{D}\hat{a}^2\rangle$ ,  $\langle\hat{a}^+\hat{D}\hat{a}^2\rangle$  и т.д.), также меньше единицы. Пренебрегая этими слагаемыми (второго и более высокого порядков по операторам рождения и уничтожения плазмона), получим следующую замкнутую относительно средних значений операторов систему уравнений:

$$\langle\hat{\mathbf{x}}\rangle = M\langle\mathbf{x}\rangle + \mathbf{x}_0. \quad (27)$$

Здесь

$$\hat{\mathbf{x}} = (\hat{a}, \hat{a}^+, \hat{\sigma}, \hat{\sigma}^+, \hat{a}\hat{D}, \hat{a}^+\hat{D}, \hat{a}^+\hat{\sigma}\hat{a}, \hat{a}^+\hat{\sigma}^+\hat{a}),$$

$$\hat{a}^+\hat{a}, \hat{D}, \hat{a}^+\hat{\sigma}, \hat{\sigma}^+\hat{a}, \hat{a}^+\hat{D}\hat{a})^T, \quad (28)$$

$$\mathbf{x}_0 = (-i\alpha\Omega, i\alpha\Omega, 0, 0, 0, 0, 0, 0, -2/\tau_{\sigma}, i\Omega_{\text{R}}/2, -i\Omega_{\text{R}}/2, 0)^T \quad (29)$$

и

$$M = \begin{pmatrix} M_{11} & M_{12} & M_{13} \\ M_{21} & M_{22} & M_{23} \\ M_{31} & M_{32} & M_{33} \end{pmatrix}, \quad (30)$$

где

$$M_{11} = \begin{pmatrix} -1/\tau_a & 0 & -i\Omega_{\text{R}} & 0 & 0 \\ 0 & -1/\tau_a & 0 & i\Omega_{\text{R}} & 0 \\ 0 & 0 & -1/\tau_{\sigma} & 0 & i\Omega_{\text{R}} \\ 0 & 0 & 0 & -1/\tau_{\sigma} & 0 \\ -2/\tau_{\sigma} & 0 & i\Omega_{\text{R}} & 0 & -1/(\tau_{\sigma}/2 + \tau_a) \end{pmatrix}, \quad (31)$$

$$M_{22} = \begin{pmatrix} -2/(\tau_{\sigma} + 2\tau_a) & 0 & -2i\Omega & 0 & i\alpha\Omega \\ 0 & -2/(\tau_a + 2\tau_{\sigma}) & 0 & 0 & 0 \\ -i\Omega_{\text{R}}/2 & 0 & -2/(\tau_a + 2\tau_{\sigma}) & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -2/\tau_a & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & -2/\tau_{\sigma} \end{pmatrix}, \quad (32)$$

$$M_{12} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & i\Omega \\ -i\Omega_{\text{R}} & 0 & 0 & 0 & -i\Omega \\ 0 & 2i\Omega & 0 & 0 & -i\alpha\Omega \end{pmatrix}, \quad (33)$$

$$M_{21} = \begin{pmatrix} 0 & -2/\tau_{\sigma} & 0 & -i\Omega_{\text{R}} & 0 \\ i\Omega_{\text{R}}/2 & 0 & 0 & 0 & i\Omega_{\text{R}}/2 \\ 0 & -i\Omega_{\text{R}}/2 & 0 & 0 & 0 \\ i\alpha\Omega & -i\alpha\Omega & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 2i\Omega & -2i\Omega & 0 \end{pmatrix}, \quad (34)$$

$$M_{13} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & -i\Omega & 0 \end{pmatrix}, \quad (35)$$

$$M_{23} = \begin{pmatrix} i\Omega & 0 & 0 \\ -i\alpha\Omega & 0 & i\Omega \\ 0 & i\alpha\Omega & -i\Omega \\ -i\Omega_{\text{R}} & i\Omega_{\text{R}} & 0 \\ 2i\Omega_{\text{R}} & -2i\Omega_{\text{R}} & 0 \end{pmatrix},$$

$$M_{31} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & i\alpha\Omega & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -i\alpha\Omega & -i\Omega \\ 0 & 0 & 0 & 0 & i\alpha\Omega \end{pmatrix}, \quad (36)$$

$$M_{32} = \begin{pmatrix} i\Omega & 0 & 0 & 0 & i\Omega_R/2 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & -i\Omega_R/2 \\ -i\alpha\Omega & 2i\Omega & -2i\Omega & -2/\tau_\sigma & 0 \end{pmatrix}, \quad (37)$$

$$M_{33} = \begin{pmatrix} -1/(\tau_a + \tau_\sigma) & 0 & i\Omega_R \\ 0 & -1/(\tau_a + \tau_\sigma) & -i\Omega_R \\ i\Omega_R & -i\Omega_R & -2/(\tau_a + \tau_\sigma) \end{pmatrix}. \quad (38)$$

Размерность матрицы (30) равна  $13 \times 13$ . При этом матрицы  $M_{11}$ ,  $M_{12}$ ,  $M_{21}$ ,  $M_{22}$  и  $M_{33}$  являются квадратными. Размерность матриц  $M_{11}$ ,  $M_{12}$ ,  $M_{21}$ ,  $M_{22}$  равна  $5 \times 5$ , а матрицы  $M_{33}$  –  $3 \times 3$ . Матрицы  $M_{13}$ ,  $M_{23}$ ,  $M_{31}$ ,  $M_{32}$  – прямоугольные. Размерность матриц  $M_{13}$  и  $M_{23}$  равна  $5 \times 3$ , а матриц  $M_{31}$  и  $M_{32}$  –  $3 \times 5$ .

Система (27) описывает динамику взаимодействующих атома и НЧ, находящихся под действием внешнего поля. Так как эта система уравнений является линейной, для анализа спектра атома в присутствии НЧ можно применить квантовую теорему регрессии.

Напомним, что для наблюдения трехпикового спектра необходимо выполнение условия  $|\Omega| = |\mathbf{E}\boldsymbol{\mu}_{\text{TLS}}|/\hbar \gg \tau_\sigma^{-1}$ . С другой стороны, требование малости числа плазмонов налагает следующее ограничение на величину внешнего поля:  $\Omega \ll \tau_a^{-1}$ . Экспериментальные значения констант затухания НЧ и двухуровневого атома, выполненного в виде полупроводниковой квантовой точки, таковы, что  $\tau_a \sim 10^{-14}$  с  $\ll \tau_\sigma \sim 10^{-11}$  с. Поэтому существуют такие значения амплитуды внешнего поля ( $\tau_\sigma^{-1} \ll \Omega \ll \tau_a^{-1}$ ), при которых спектр атома имеет вид триплета, а число плазмонов в НЧ мало. Таким образом, в широком интервале величин внешнего поля исследование влияния НЧ на спектр резонансной флуоресценции можно проводить в предположении, что число плазмонов мало.

**4. Спектр атома в присутствии НЧ.** Согласно теореме Винера–Хинчина спектр  $S(\omega)$  есть фурье-преобразование двухвременной корреляционной функции  $\langle E(t+\tau)E^+(t) \rangle$ . Далее мы будем предполагать, что дипольные моменты НЧ и двухуровневого атома коллинеарны и расположены параллельно оси  $x$ , электромагнитная волна, линейно поляризованная вдоль оси  $x$ , падает вдоль оси  $y$ , а точка наблюдения находится на оси  $z$ . Тогда  $\langle (\mathbf{r}, t + \tau)E^+(\mathbf{r}, t) \rangle = I_0(\mathbf{r})\langle [\alpha\hat{a}^+(t+\tau) + \hat{\sigma}^+(t+\tau)][\alpha\hat{a}(t) + \hat{\sigma}(t)] \rangle$ , где  $I_0(\mathbf{r}) = (\omega_{\text{TLS}}^2 |\boldsymbol{\mu}_{\text{TLS}}|/c^2 |\mathbf{r}|)^2$ . Ниже при вычислении спектра множитель  $I_0(\mathbf{r})$  мы будем опускать. Таким образом, для вычисления спектра системы необходимо знать следующие средние зна-

чения операторов:  $\langle \hat{a}^+(t+\tau)\hat{a}(t) \rangle$ ,  $\langle \hat{a}^+(t+\tau)\hat{\sigma}(t) \rangle$ ,  $\langle \hat{\sigma}^+(t+\tau)\hat{a}(t) \rangle$  и  $\langle \hat{\sigma}^+(t+\tau)\hat{\sigma}(t) \rangle$ . Они находятся путем применения квантовой теоремы регрессии (6) к системе (27). Это дает следующую систему уравнений, определяющую указанные величины:

$$\frac{\partial}{\partial \tau} \langle \hat{x}_i(t+\tau)\hat{x}_j(t) \rangle = M_{ik} \langle \hat{x}_k(t+\tau)\hat{x}_j(t) \rangle + x_{0i} \langle \hat{x}_j(t) \rangle, \quad (39)$$

где  $\hat{\mathbf{x}}$ ,  $\mathbf{x}_0$  и  $M$  задаются выражениями (28)–(30) соответственно.

Система (39) решалась численно. Фурье-образ  $\langle E(\mathbf{r}, t+\tau)E^+(\mathbf{r}, t) \rangle$  представлен на рис. 1–4. Из рис. 1 видно, что когда НЧ и атом не взаимодействуют,

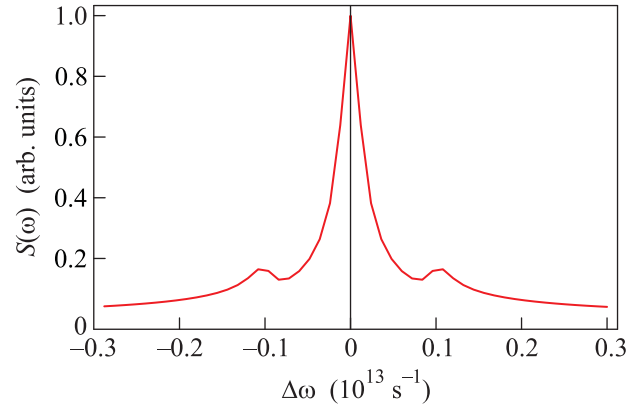


Рис. 1. Спектр атома и НЧ во внешнем поле,  $\Omega_R = 0$

спектр представляет собой сумму спектра резонансной флуоресценции (молловский триплет) и широкой линии НЧ. При увеличении константы взаимодействия НЧ и атома боковые пики спектра резонансной флуоресценции “поглощаются” уширяющимся центральным пиком. Особенность этого “поглощения” состоит в том, что оно происходит несимметрично для каждого пика. Сначала “поглощается” правый пик (рис. 2), так что остается только два пика: центральный и левый (рис. 3). Профиль спектра в данном случае представляет собой линию фанорезонанса, что имеет место при взаимодействии двух осцилляторов. В этой ситуации внешнее поле играет роль возбуждения системы, а сдвиг фаз дипольных моментов устанавливается только за счет взаимодействия между НЧ и атомом.

При дальнейшем увеличении интенсивности взаимодействия между атомом и НЧ начинает поглощаться и левый пик спектра. При больших значениях константы взаимодействия (много больших, чем с внешним полем,  $\Omega_R \gg \Omega$  спектр представляет собой лоренцевскую линию, ширина которой пропор-

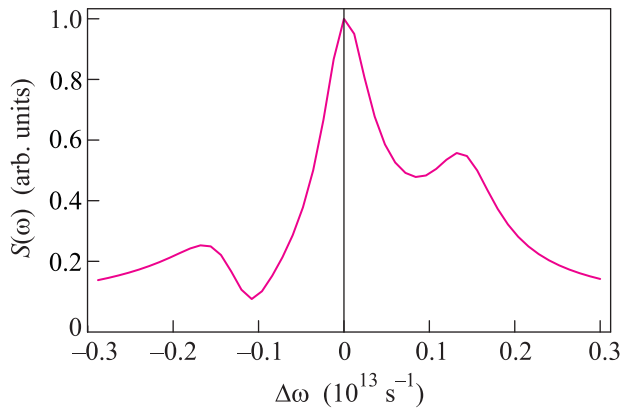


Рис. 2. Спектр атома и НЧ во внешнем поле,  $\Omega_R = 4 \cdot 10^{12} \text{ c}^{-1}$

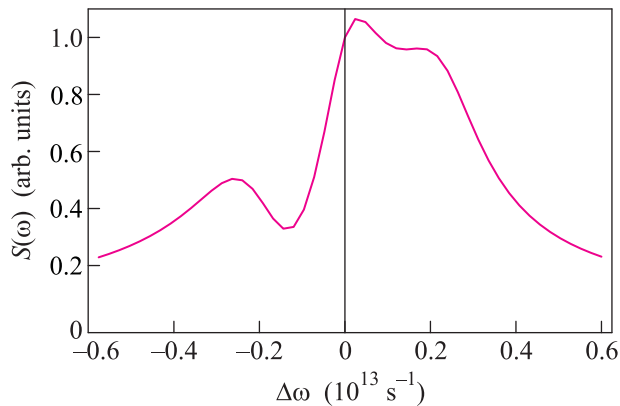


Рис. 3. Спектр атома и НЧ во внешнем поле,  $\Omega_R = 8 \cdot 10^{12} \text{ c}^{-1}$

циональна  $\Omega_R^2$ , т.е. квадрату константы взаимодействия между НЧ и атомом (рис. 4).

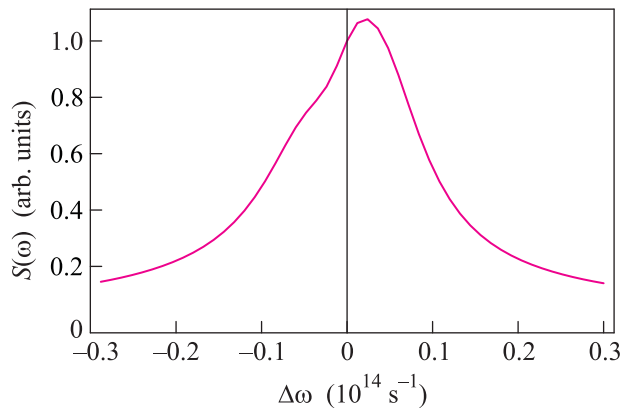


Рис. 4. Спектр атома и НЧ во внешнем поле,  $\Omega_R = 2 \cdot 10^{13} \text{ c}^{-1}$

**5. Выводы.** Итак в настоящей работе исследовано влияние взаимодействия НЧ с атомом на спектр резонансной флуоресценции. Показано, что при уве-

личении интенсивности их взаимодействия происходит изменение формы молловского триплета. Сначала исчезает правый пик. При этом спектр принимает типичную форму линии фано-резонанса. Физический смысл такого поведения спектра можно понять, представив взаимодействующие НЧ и двухуровневый атом как два связанных осциллятора. Их взаимодействие приводит к тому, что разность фаз между колебаниями дипольных моментов НЧ и атома зависит от расстройки частоты внешнего возбуждения и собственных частот этих осцилляторов. Возникающая интерференционная картина приводит к спектру типа фано-резонанса на фоне спектра резонансной флуоресценции. Важной особенностью этого спектра является то, что при определенной интенсивности взаимодействия между НЧ и атомом правый пик молловского триплета исчезает, в то время как левый все еще присутствует в спектральной линии. При еще более сильном взаимодействии спектр вырождается в лоренцевскую линию, ширина которой пропорциональна квадрату  $\Omega_R^2$  константы взаимодействия между НЧ и атомом.

Авторы выражают благодарность В.В. Климову, Ю.Е. Лозовику и Н.М. Щелкачеву за полезное обсуждение данной работы. Исследования были частично поддержаны грантами РФФИ # 12-02-01093 и 13-02-00407, грантом PSC-CUNY, а также фондом некоммерческих программ “Династия”.

1. *Plasmonic. Nanoguides and Circuits* (ed. by S. I. Bozhevolniy), Singapore: Pan Stanford Publishing, 2009.
2. S. A. Maier, *Plasmonics: Fundamentals and Applications*, Springer, (2007).
3. *Nanophotonics with surface plasmons* (ed. by V. M. Shalaev and S. Kawata), Amsterdam: Elsevier, 2007.
4. В. В. Климов, *Наноплазмоника*, М.: Физматлит, 2010.
5. Л. Новотный, Б. Хехт, *Основы нанооптики*, М.: Физматлит, 2009.
6. I. E. Protsenko, A. V. Uskov, O. A. Zaimidoroga et al., *Phys. Rev. A* **71**, 063812 (2005).
7. И. Е. Проценко, *УФН* **182**, 1116 (2012).
8. D. J. Bergman and M. I. Stockman, *Phys. Rev. Lett.* **90**, 027402 (2003).
9. M. I. Stockman, *Nature Photonics* **2**, 327 (2008).
10. P. Kumar, V. K. Tripathi, and C. S. Liu, *J. Appl. Phys.* **104**, 033306 (2008).
11. Y.-J. Lu, J. Kim, H.-Y. Chen et al., *Science* **337**, 450 (2012).
12. E. S. Andrianov, D. G. Baranov, A. A. Pukhov et al., *ArXiv cond-mat/1209.0422* (2012).

13. E. S. Andrianov, A. A. Pukhov, A. V. Dorofeenko et al., *Opt. Lett.* **36**, 4302 (2011).
14. A. Fang, T. Koschny, and C. M. Soukoulis, *J. Opt.* **12**, 024013 (2010).
15. A. Fang, T. Koschny, M. Wegener et al., *Phys. Rev. B* **79**, 241104(R) (2009).
16. J. B. Pendry and S. A. Maier, *Phys. Rev. Lett.* **107**, (2011).
17. M. I. Stockman, *Phys. Rev. Lett.* **106**, 156802 (2011).
18. M. I. Stockman, *Phys. Rev. Lett.* **107**, (2011).
19. S. Wuestner, A. Pusch, K. L. Tsakmakidis et al., *Phys. Rev. Lett.* **105**, 127401 (2010).
20. E. M. Purcell, H. C. Torrey, and R. V. Pound, *Phys. Rev.* **69**, 37 (1946).
21. А. Н. Ораевский, *УФН* **164**, 415 (1994).
22. Y. Gu, L. Huang, O. J. F. Martin et al., *Physical Review B* **81**, 193103 (2010).
23. Y. V. Vladimirova, V. V. Klimov, V. M. Pastukhov et al., *Phys. Rev. A* **85**, 0534081 (2012).
24. F. Y. Wu, R. E. Grove, and S. Ezekiel, *Phys. Rev. Lett.* **35**, 1426 (1975).
25. F. Schuda, J. C. R. Stroud, and M. Hercher, *J. Phys. B: At. Mol. Phys.* **7**, L198 (1974).
26. B. R. Mollow, *Phys. Rev.* **198**, 1969 (1969).
27. H. J. Kimble and L. Mandel, *Phys. Rev. A* **13**, 2123 (1976).
28. U. Fano, *Phys. Rev.* **50**, 573 (1936).
29. Е. С. Андрианов, А. А. Пухов, А. В. Дорофеевко и др., *Радиотехника и электроника* **56**, 1501 (2011).
30. F. Stietz, J. Bosbach, T. Wenzel et al., *Phys. Rev. Lett.* **84**, 5644 (2000).
31. А. П. Виноградов, Е. С. Андрианов, А. А. Пухов и др., *УФН* **182**, 1122 (2012).
32. Y. Yamamoto and A. Imamoglu, *Mesoscopic Quantum Optics*, John Wiley & Sons, inc., N.Y., 1999.
33. М. О. Скалли, М. С. Зубайри, *Квантовая оптика*, М.: Физматлит, 2003.
34. Г. Хакен, *Лазерная светодинамика*, М.: Мир, 1988.
35. Р. Пантел, Г. Путхов, *Основы квантовой электроники*, М.: Мир, 1972.
36. H. Carmichael, *An Open Systems Approach to Quantum Optics*, Springer-Verlag, Berlin, 1991.
37. К. В. Гардинер, *Стохастические методы в естественных науках*, М.: Мир, 1986.
38. E. S. Andrianov, A. A. Pukhov, A. V. Dorofeenko et al., *Opt. Express* **19**, 24849 (2011).
39. A. S. Rosenthal and T. Ghannam, *Phys. Rev. A* **79**, 043824 (2009).