

УДК 535.371

ДИНАМИКА СВЯЗАННОГО С МЕТАЛЛИЧЕСКОЙ НАНОСТРУКТУРОЙ КВАНТОВОГО ИЗЛУЧАТЕЛЯ В УСЛОВИЯХ РЕЗОНАНСНОГО ВОЗДЕЙСТВИЯ ВНЕШНЕГО ПОЛЯ

Х.В. НЕРКАРАЯН*, Т.С. ЕЗЕКЯН

Ереванский государственный университет, Ереван, Армения

*e-mail: knerkar@ysu.am

(Поступила в редакцию 16 октября 2018 г.)

Исследована динамика релаксации квантового дипольного излучателя, связанного с металлической наноструктурой, в резонансном внешнем поле накачки. Установлено, что в режиме слабой накачки фаза отклика от металлической наноструктуры играет ключевую роль в динамике квантового дипольного излучателя и позволяет управлять процессом флуоресценции. Показано, что при настройке фазового сдвига близко к $\pi/2$ квантовый излучатель совершает быстрый переход в основное состояние, затем медленно переходит в суперпозиционное состояние с небольшой вероятностью нахождения в возбужденном состоянии. Между тем, в случае значений фазового сдвига, близких к $3\pi/2$, система релаксирует в стационарное суперпозиционное состояние, в котором вероятность возбужденного состояния близка к единице. Установлено, что динамика системы также зависит от интенсивности внешнего поля и с усилением последнего система входит в режим асимметричных колебаний Раби.

1. Введение

Контролируемое изменение динамики излучения квантовой системы является одной из важнейших задач современной электродинамики. Недавние достижения в области нанооптики, в частности, экспериментальные исследования спонтанного излучения одной молекулы, взаимодействующей с металлическими наноструктурами (МНС) [1, 2], часто называемыми наноантеннами, значительно расширили возможности обнаружения новых особенностей взаимодействия излучения с веществом. Связь между квантовыми дипольными излучателями (КДИ), такими как молекулы или квантовые точки, с локализованными поверхностными плазмонами (ЛПП) МНС в оптическом диапазоне частот позволяет контролировать поток электромагнитной энергии [2–4].

Наиболее часто обсуждаемым эффектом, возникающим в результате взаимодействия КДИ с МНС, является изменение флуоресценции (усиление или тушение), определяемое соотношением между скоростями излучательной и безызлучательной релаксации (оба усиливаются вблизи МНС) [2–4]. Эти изменения в основном объясняются усилением локальных полей возле МНС. Между тем, в работах [5–9] было показано, что фаза отклика от МНС может иметь ключевую роль в указанных процессах. В режиме строгого плазмонного резонанса отклик от МНС всегда сдвинут по фазе на $\pi/2$, и в резонансно-связанной системе КДИ–МНС наблюдается быстрый переход КДИ от возбужденного состояния в основное состояние. Кривая, характеризующая релаксационную динамику КДИ (зависимость населенности от времени), имеет ступенчатый вид [5, 6], тогда как релаксация изолированного атома характеризуется экспоненциальной функцией [10]. С другой стороны, если выходить за пределы плазмонного резонанса, фаза отклика от МНС будет существенно отличаться от $\pi/2$. Так, например, в определенном диапазоне частот фаза отклика поля от конической металлической вершины сдвинута на $3\pi/2$ [11]. В этих условиях динамика резонансно-связанной системы КДИ–МНС, которая находится под воздействием слабого внешнего поля, в корне отличается от предыдущего случая, и возбужденный КДИ переходит в стабильное состояние, которое является суперпозицией возбужденного и основного состояний, с близкой к единице вероятностью нахождения в возбужденном состоянии. При наличии внешнего резонансного поля, если КДИ изначально находится в основном состоянии, он осуществляет быстрый переход в возбужденное состояние и опять релаксирует в стабильное (суперпозиционное) состояние с близкой к единице вероятностью нахождения в возбужденном состоянии [7]. Следовательно, фаза отклика от МНС еще один важный параметр, которым можно управлять процессом флуоресценции.

В настоящей работе исследуется влияние фазового сдвига на динамику КДИ в связанной системе КДИ–МНС с учетом релаксационных параметров системы. Для общности конфигурация и геометрия МНС не уточняются, и для фазы отклика использованы разные значения в диапазоне $[0, 2\pi]$. В исследованиях релаксационной динамики резонансно-связанной системы КДИ–МНС было установлено, что результаты, полученные с использованием квантового [5] и квазиклассического [6] подходов, идентичны, так как осциллирующий ток ЛППП описывается когерентными состояниями. Поэтому здесь будет использован квазиклассический подход для выявления роли фазы отклика от МНС.

2. Теория

Рассматриваемая система представляет собой двухуровневый КДИ, расположенный вблизи МНС. Вся система находится под воздействием внешнего электромагнитного излучения, частота которого совпадает с частотой перехода КДИ. Представим волновую функцию КДИ в виде когерентной суперпозиции двух его состояний:

$$\Psi(t) = a_0(t)\psi_0 e^{-\frac{i}{\hbar}E_0 t} + a_1(t)\psi_1 e^{-\frac{i}{\hbar}E_1 t}, \quad (1)$$

где ψ_1 и ψ_0 – волновые функции КДИ в возбужденном и основном состояниях с энергиями E_1 и E_0 , соответственно, тогда как $a_1(t)$ и $a_0(t)$ – соответствующие этим состояниям амплитуды вероятности, зависящие от времени. Следовательно, для дипольного момента КДИ имеем

$$\mathbf{D}(t) = a_1 a_0^* \mathbf{d}_{10} e^{-i\omega_{10} t} + a_1^* a_0 \mathbf{d}_{10}^* e^{i\omega_{10} t}. \quad (2)$$

Здесь звездочкой обозначены комплексно-сопряженные величины, $\mathbf{d}_{10} = \int \psi_1(\mathbf{r}) \psi_0^* dV$ и $\hbar\omega_{10} = E_1 - E_0$ – соответственно дипольный момент и энергия перехода. Внешнее резонансное поле может быть представлено как

$$\mathbf{E}_{\text{ext}} = \mathbf{E}_0 e^{-i\omega_{10} t} + \mathbf{E}_0^* e^{i\omega_{10} t}. \quad (3)$$

Предположим, что длина волны излучения значительно больше расстояния между КДИ и МНС, которое, в свою очередь, намного больше линейных размеров МНС. В рассматриваемом электростатическом приближении, внешнее электрическое поле, а также поле, созданное КДИ в области МНС, можно считать однородными. Итак, общее поле действующее на МНС имеет вид

$$\mathbf{E}_{\text{tot}} = \mathbf{E}_{\text{ext}} + \frac{\mathbf{D}}{4\pi\epsilon_0\epsilon_m R^3}. \quad (4)$$

Здесь ϵ_0 и ϵ_m – проницаемость вакуума и относительная проницаемость диэлектрической среды, соответственно. В общем случае отклик МНС определяется с учетом влияния внешнего поля, а также релаксационных процессов ЛПП МНС. Однако, как было показано в работах [6–8], резонансное возбуждение ЛПП, связанное с колебаниями свободных электронов МНС, можно рассматривать как классические колебания тока, поскольку количество свободных электронов довольно большое ($\sim 100 \text{ нм}^{-3}$) и их энергетический спектр можно считать непрерывным. Этот классический осциллирующий ток, в свою очередь, можно описать квантовыми когерентными состояниями ЛПП [12]. При таком представлении результаты квантового и квазиклассического подходов одинаковы. Наряду с вышесказанным, скорость распада ЛПП больше на пять порядков, чем скорость

спонтанной релаксации КДИ, поэтому даже для относительно сильносвязанных систем КДИ–МНС релаксация системы намного медленнее, чем релаксация ЛПП, что позволяет игнорировать динамику ЛПП и считать отклик МНС мгновенным.

Поле, действующее на КДИ, представляет собой сумму внешнего поля накачки, его рассеянной части на МНС и отклика поля КДИ от МНС:

$$\mathbf{E} = \mathbf{E}_0 e^{-i\omega_0 t} + A \left(\mathbf{E}_0 e^{-i\omega_0 t} + \frac{1}{4\pi\epsilon_0\epsilon_m R^3} a_1 a_0^* \mathbf{d}_{10} e^{-i\omega_0 t} \right) + \text{с. с.}, \quad (5)$$

здесь параметр $A = A_r + iA_i = A_0 e^{i\varphi}$, $A_0 > 0$ характеризует усиление отклика поля от МНС.

Используя зависящее от времени уравнение Шредингера для двухуровневой системы во внешнем поле накачки, после стандартных операций в приближении вращающейся волны можно получить следующую систему уравнений для матрицы плотности:

$$\begin{aligned} \frac{d\rho_{11}}{dt} &= -2A_i\mu\rho_{11}\rho_{00} + i(\beta(1+A)\rho_{01} - \beta^*(1+A^*)\rho_{10}) - \Gamma_0\rho_{11}, \\ \frac{d\rho_{10}}{dt} &= iA\mu\rho_{10}(\rho_{00} - \rho_{11}) + i(1+A)\beta(\rho_{00} - \rho_{11}) - \frac{\Gamma_0}{2}\rho_{10}, \\ \rho_{11} + \rho_{00} &= 1, \quad \rho_{10} = \rho_{01}^*, \end{aligned} \quad (6)$$

где

$$\mu = \frac{|\mathbf{d}_{10}|^2}{4\pi\hbar\epsilon_0\epsilon_m R^3}, \quad \beta = \frac{\mathbf{E}_0 \mathbf{d}_{10}^*}{\hbar}. \quad (7)$$

Здесь параметры μ и β соответственно определяют коэффициент отклика МНС (то есть самовоздействие КДИ) и воздействие внешнего резонансного поля накачки на КДИ. Как видно из обозначений (7), величина β зависит в том числе от поляризации внешнего резонансного поля, и для максимальной эффективности взаимодействия необходимо, чтобы внешнее поле было поляризовано вдоль оси дипольного момента КДИ. Отметим, что в отличие от работ [5–7] здесь включен релаксационный параметр Γ_0 . Примечательно, что действительная часть коэффициента отклика сдвигает резонансную частоту на величину $A_i\mu$.

3. Результаты и их обсуждение

Проведем численный анализ уравнений (6). Внесем важный параметр $\alpha = |\beta|/\mu$, который определяется отношением между эффективностью взаимодействия внешнего поля с КДИ и его самовоздействием через МНС. Как было

отмечено, нас интересует режим относительно слабого внешнего поля ($\alpha < 1$). Предположим, что отклик от МНС не усиливает поле, т. е. $A_0 = 1$. Рассмотрим динамику КДИ при фиксированном α , где основную роль играет фазовый сдвиг отклика поля КДИ. На рис.1 приведены кривые $\rho_{11}(t)$ для разных фаз отклика от МНС при значении $\alpha = 0.2$. При небольшом сдвиге фазы ($\pi/12$) мы наблюдаем колебания Раби с наличием высоких гармоник. В случае сдвига фазы отклика на $\pi/3$ происходит быстрая релаксация КДИ, чему следует переход в стабильное суперпозиционное состояние с небольшой вероятностью нахождения в возбужденном состоянии. При сдвиге фазы на $5\pi/3$ система релаксирует в стабильное суперпозиционное состояние с высокой вероятностью нахождения в возбужденном состоянии.

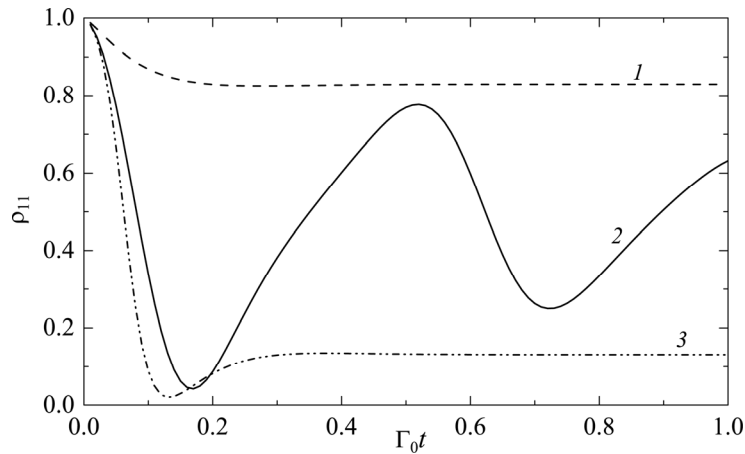


Рис.1. Зависимость ρ_{11} от времени, нормированного по величине Γ_0 , при фиксированной интенсивности внешнего поля ($\alpha = 0.2$) для разных фаз отклика: 1 – $\varphi = \pi/12$, 2 – $\pi/3$ и 3 – $5\pi/3$.

Рассмотрим влияние величины внешнего резонансного поля на динамику КДИ. Кривые зависимости ρ_{11} от времени для некоторых значений α и при двух разных фазовых сдвигах отклика от МНС ($\varphi = \pi/3, 5\pi/3$) приведены на рис.2. Как видно из рис.2а, при фазовом сдвиге на $5\pi/3$ система медленно переходит в суперпозиционное состояние, где с большой вероятностью находится в возбужденном состоянии, однако с повышением интенсивности внешнего поля эта вероятность уменьшается и, начиная с определенного значения, система входит в режим несимметричных осцилляций Раби. В случае фазового сдвига на $\pi/3$ (рис.2б) система быстро переходит из возбужденного состояния в основное состояние, чему следует медленный переход в устойчивое суперпозиционное

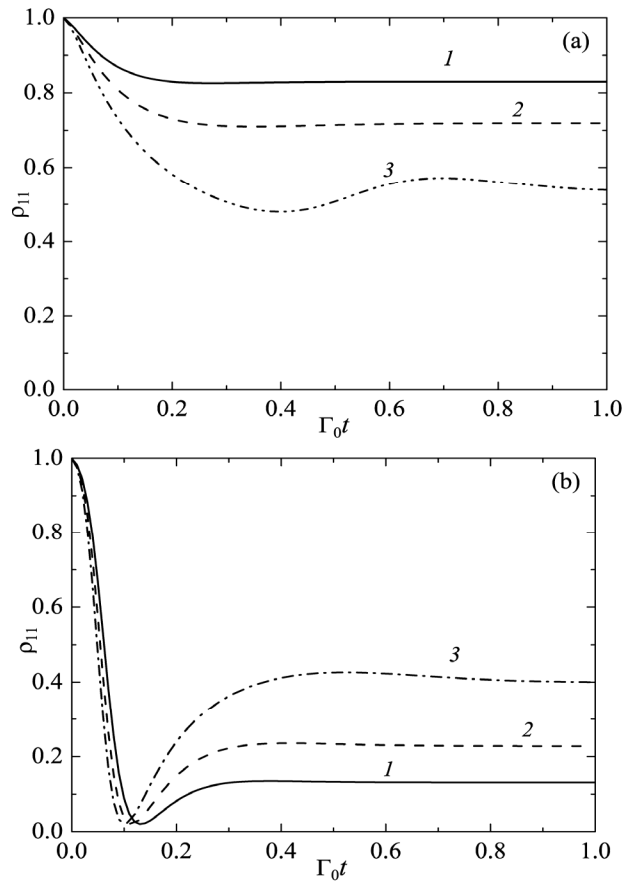


Рис.2. Зависимость ρ_{11} от времени для фаз отклика (а) $5\pi/3$ и (б) $\pi/3$ при различных интенсивностях α внешнего поля: 1 – 0.2, 2 – 0.25 и 3 – 0.3.

состояние с невысокой вероятностью нахождения в возбужденном состоянии. Отметим, что в отличие от предыдущего случая здесь с возрастанием α вероятность нахождения в возбужденном состоянии возрастает и постепенно переходит в режим осцилляций Раби. Частота и спектр осцилляций Раби в основном определяются фазовым откликом от МНС, однако с усилением внешнего поля накачки влияние фазы уменьшается.

Проведенный анализ выявляет новую возможность управления динамическими процессами КДИ с помощью МНС. Оказывается, что помимо эффекта локального усиления поля, значение фазового сдвига отклика от МНС также существенно влияет на эти процессы. При определенных условиях оно может как ускорить, так и замедлить переход КДИ из возбужденного состояния в основное состояние. Это влияние особенно заметно для относительно слабых внешних полей.

Можно предположить, что в результате продления времени жизни возбужденного состояния КДИ рассматриваемые структуры будут способствовать повышению эффективности таких процессов, как комбинационное рассеяние света или ап-конверсия люминесценции. Так блокировка релаксационного канала между возбужденным и основным состояниями увеличивает вероятность перехода КДИ в другие возможные состояния.

4. Заключение

Исследована динамика помещенной во внешнее резонансное поле системы КДИ–МНС. В ходе численных расчетов учитывались релаксационные процессы и был рассмотрен широкий диапазон фазовых сдвигов отклика от МНС. Было показано, что в режиме слабой накачки сдвиг фазы отклика от МНС имеет ключевое значение в динамике КДИ. При фазовых сдвигах, близких к $\pi/2$, КДИ совершает быстрый переход в основное состояние и далее медленно переходит в суперпозиционное состояние с небольшой вероятностью нахождения в возбужденном состоянии. При фиксированной интенсивности внешнего поля эта вероятность зависит от фазы: чем ближе фаза отклика к $\pi/2$, тем меньше вероятность нахождения в возбужденном состоянии. При значениях сдвига фазы, близких к $3\pi/2$, система релаксирует в стационарное суперпозиционное состояние, в котором вероятность нахождения КДИ в возбужденном состоянии высокая. Динамика КДИ также зависит от интенсивности внешнего поля – с увеличением интенсивности система входит в режим асимметричных колебаний Раби; асимметричность колебаний также определяется значением фазового отклика от МНС.

ЛИТЕРАТУРА

1. J.N. Farahani, D.W. Pohl, H.J. Eisler, B. Hecht. Phys. Rev. Lett., **95**, 017402 (2005).
2. P. Anger, P. Bharadwaj, L. Novotny. Phys. Rev. Lett., **96**, 113002 (2006).
3. X.W. Chen, M. Agio, V. Sandoghdar. Phys. Rev. Lett., **108**, 233001 (2012).
4. G.P. Acuna, M. Bucher, I.H. Stein, C. Steinhauer, A. Kuzyk, P. Holzmeister, R. Schreiber, A. Moroz, F.D. Stefani, T. Liedl, F.C. Simmel, P. Tinnefeld. ACS Nano, **6**, 3189 (2012).
5. K.V. Nerkararyan, S.I. Bozhevolnyi. Faraday Discussions, **178**, 295 (2015).
6. K.V. Nerkararyan, S.I. Bozhevolnyi. Opt. Lett., **36**, 1617 (2014).
7. K.V. Nerkararyan, T.S. Yezekyan, S.I. Bozhevolnyi. J. Luminescence, **192**, 595 (2017).
8. K.V. Nerkararyan, T.S. Yezekyan, S.I. Bozhevolnyi. Phys. Rev. B, **97**(4), 045401 (2018).
9. С.Х. Неркаряян. Известия НАН Армении, Физика, **51**, 357 (2016).
10. V.F. Weisskopf, E.P. Wigner. Z. Phys., **63**, 54 (1930).

11. A. Pors, K.V. Nerkararyan, S.I. Bozhevolnyi. Opt. Lett., **39**, 3308 (2014).
12. C. Gerry, P. Knight. Introductory Quantum Optics. Cambridge University Press, Cambridge, 2005.

ՄԵՏԱՂԱԿԱՆ ՆԱՆՈԿԱՌՈՒՅՎԱԾՔԻ ՀԵՏ ԿԱՊՎԱԾ ՔՎԱՆՏԱՅԻՆ
ՃԱՌԱԳԱՅԹՉԻ ՎԱՐՔԸ ԱՐՏԱՔԻՆ ՌԵԶՈՆԱՆՍԱՅԻՆ ԴԱՇՏԻ
ԱԶԴԵՅՈՒԹՅԱՄԲ

Խ.Վ. ՆԵՐԿԱՐԱՐՅԱՆ, Թ.Ս. ԵԶԵԿՅԱՆ

Ուսումնասիրվել է մետաղական նանոկառուցվածքի հետ կապված քվանտային դիպոլային ճառագայթի ռելաքսացման դինամիկան արտաքին, ռեզոնանսային, մղման դաշտի առկայությամբ: Պարզվել է, որ թույլ մղման ռեժիմում, մետաղական նանոկառուցվածքից արձագանքված դաշտի փուլը առանցքային նշանակություն ունի քվանտային դիպոլային ճառագայթի վարքում, ինչը թույլ է տալիս դեկավարել ֆլուորեսցենցիայի պրոցեսը: Ցույց է տրվել, որ երբ փուլային շեղումը լարքավորված է $\pi/2$ -ի մերձակայքում, քվանտային ճառագայթիչը արագ անցում է կատարում հիմնական վիճակ, ապա դանդաղ տեղափոխվում սուպերպոզիցիոն վիճակի, ուր գրգռված վիճակում գտնվելու հավանականությունը փոքր է: Մինևս ժամանակ, փուլի շեղման $3\pi/2$ -ին մոտ արժեքների դեպքում համակարգը ռելաքսացվում է կայուն սուպերպոզիցիոն վիճակի, որտեղ գրգռված վիճակում գտնվելու հավանականությունը մոտ է մեկի: Պարզվել է, որ համակարգի վարքը կախված է նաև արտաքին դաշտի ինտենսիվությունից և վերջինի մեծացմանը զուգահեռ, համակարգը անցնում է Ռաբիի ոչ սիմետրիկ տատանումների ռեժիմին:

DYNAMICS OF A QUANTUM EMITTER COUPLED
TO A METAL NANOSTRUCTURE IN THE PRESENCE
OF EXTERNAL RESONANT FIELD

K.V. NERKARARYAN, T.S. YEZEKYAN

The relaxation dynamics of a quantum dipole emitter coupled to a metal nanostructure in the presence of an external resonant pump field is studied. It was found that in the mode of weak pumping, the phase of the response from a metallic nanostructure has a key role in the dynamics of the quantum dipole emitter and allows to control the fluorescence process. It is shown that when the phase shift is set close to $\pi/2$, the quantum emitter makes a quick transition to the ground state, then slowly passing into a superposition state with a small probability of being in an excited state. Meanwhile, in the case of phase shift values close to $3\pi/2$, the system relaxes into a stationary superposition state where the probability of the excited state is close to one. It was established, that the dynamics of the system also depends on the intensity of the external field and with the amplification of the latter, the system enters the mode of the asymmetric Rabi oscillations.