

СПЕКТР ДВУХФОТОННОЙ ФЛЮОРЕСЦЕНЦИИ В СИСТЕМЕ АТОМ+ДИЭЛЕКТРИЧЕСКАЯ МИКРОСФЕРА

В.В.Климов¹⁾, В.С.Летохов⁺

*Физический институт им. П.Н.Лебедева РАН
117294 Москва, Россия*

⁺ *Институт спектроскопии РАН
142092 Троицк, Московская область, Россия*

Поступила в редакцию 9 июня 1999 г.

После переработки 6 июля 1999 г.

В рамках квантовой электродинамики рассмотрено сильное резонансное взаимодействие двухуровневого атома с диэлектрической микросферой. В качестве начального условия рассмотрен случай, когда в первый момент атом возбужден, а резонансная мода микросферы возбуждена одним фотоном. Спектр двух излученных фотонов существенно зависит от способа возбуждения микросферы, то есть от пространственного распределения энергии фотона по пространству. Наиболее характерной чертой двухфотонного спектра флюоресценции является сильная корреляция излученных фотонов по энергиям. Эта корреляция выражается в том, что энергии излученных фотонов связаны уравнением эллипса $(\omega_1 + \omega_2 - 2\omega_A)^2 + 3(\omega_1 - \omega_2)^2 = 4\Omega_{Rabi}^2$. Связь полученных результатов с предсказаниями теории одетых состояний обсуждается.

PACS: 32.50.+d, 32.80.-t, 42.50.-p

Главным свойством диэлектрической микросферы, рассматриваемой как резонатор, является ее высокая добротность в оптической области и малый эффективный объем моды [1–3]. Такая микросфера является хорошей "ловушкой" для фотонов, и даже один фотон может характеризоваться большой напряженностью электрического поля вблизи поверхности микросферы. Соответственно, атом, помещенный в область повышенной напряженности поля, может сильно взаимодействовать с резонансной модой микросферы, когда она содержит малое число фотонов и даже в их отсутствии.

Спектр однофотонной флюоресценции в системе атом+микросфера хорошо изучен [4, 5]. Структура этого спектра сильно зависит от способа возбуждения системы. В случае достаточно сильного взаимодействия атома и микросферы спектр однофотонной флюоресценции может иметь синглетный, дублетный или триплетный вид.

Целью настоящей работы является дальнейшее исследование системы атом – микросфера в режиме сильного резонансного взаимодействия. При этом в качестве начальных условий мы рассматриваем такой случай возбуждения системы, при котором как атом находится в возбужденном состоянии, так и в резонансной моде микросферы находится один фотон. Следует заметить, что присутствие лишь одного фотона в резонансной моде микросферы не означает одномодовой структуры поля. В процессе настоящего исследования в соответствие с общими принципами квантовой электродинамики мы считаем, что внутри контура резонансной моды микросферы находится большое число (в пределе континуум) квантованных мод электромагнитного поля.

¹⁾ e-mail: klimov@rim.phys.msu.su

Такого рода начальные условия не являются экзотическими и могут реализоваться всякий раз, когда возбужденный атом влетает в резонатор, содержащий один фотон. Экспериментальные установки такого рода уже существуют [6] или разрабатываются [7].

Для описания свойств спектра двухфотонной флюоресценции необходимо использовать квантовую теорию резонансного взаимодействия возбужденного атома с микросферой, резонансная мода которой содержит один фотон. Квантование электромагнитного поля в сферической геометрии хорошо известно [8]. Применительно к диэлектрической микросфере квантовая теория была рассмотрена в [5, 9].

В случае резонансного взаимодействия двухуровневого атома, расположенного в точке \mathbf{r} , с континуумом квантованных мод излучения, попадающих в контур моды шепчущей галереи, дипольный гамильтониан может быть представлен в виде [10]

$$H = H_A + H_F + H_I, \quad (1)$$

где гамильтонианы атома H_A , поля H_F и взаимодействия H_I имеют следующий вид:

$$H_A = \hbar\omega_A \begin{pmatrix} 1 & \\ & 0 \end{pmatrix}, \quad H_F = \sum_s \hbar\omega_s \left[a_s^+ a_s + \frac{1}{2} \right], \quad H_I = \begin{pmatrix} 0 & -\mathbf{d}\hat{\mathbf{E}} \\ -\mathbf{d}^* \hat{\mathbf{E}} & 0 \end{pmatrix}, \quad (2)$$

$$\hat{\mathbf{E}} = \sum_s \frac{a_s \mathbf{e}(s, \mathbf{r}) - a_s^+ \mathbf{e}^*(s, \mathbf{r})}{i\sqrt{2}}. \quad (3)$$

В (2), (3) \mathbf{d} – матричный элемент дипольного момента перехода, a_s и a_s^+ – операторы рождения и уничтожения фотона в s -ой моде. Индекс s , характеризующий квантованную моду в присутствии микросферы, имеет векторный характер, $s = (n, m, \nu)$, где n, m, ν – орбитальное, азимутальное и радиальное квантовые числа, соответственно. Частота квантованной моды

$$\omega_s = \nu \frac{\pi c}{\Lambda} + \dots \quad (4)$$

определяется радиальным волновым числом ν и радиусом сферы квантования $\Lambda \rightarrow \infty$. Явные выражения для напряженности электрического поля s -ой моды $\mathbf{e}(s, \mathbf{r})$ можно найти в [5].

В приближении вращающейся волны основное состояние, первое возбужденное многообразие, второе возбужденное многообразие и т.д. не взаимодействуют и допускают раздельное рассмотрение. Нашей основной задачей является рассмотрение взаимодействия возбужденного атома с квантованными модами, попадающими в контур одной из резонансных мод (мод шепчущей галереи).

Для решения этой задачи необходимо непосредственно решить уравнение Шредингера, описывающего динамику второго возбужденного многообразия. Если континуум квантованных мод описывать n -квантованными модами ($n \rightarrow \infty$), то уравнение Шредингера сведется к системе $n(n+3)/2$ линейных дифференциальных уравнений для амплитуд различных состояний. Вектор амплитуд вероятностей второго возбужденного многообразия имеет вид:

$$\Psi(t) = \left[\underbrace{\psi_1^A(t), \dots, \psi_n^A(t), \dots}_1, \underbrace{\psi_{1,1}^{Ph}(t), \dots, \psi_{n,n}^{Ph}(t), \dots}_2, \underbrace{\psi_{1,2}^{Ph}(t), \dots, \psi_{n-1,n}^{Ph}(t), \dots}_3 \right], \quad (5)$$

где первые n компонент описывают амплитуды вероятностей найти атом в возбужденном состоянии и один фотон в одной из квантованных мод. Вторые n компонент описывают амплитуды вероятностей найти атом в основном состоянии и два фотона в одной из квантованных мод. И, наконец, остальные $n(n-1)/2$ компонент описывают амплитуды вероятностей найти атом в основном состоянии и два фотона в различных квантованных модах.

В частотной области уравнение Шредингера сводится к системе обычных линейных уравнений

$$(\omega - \omega_i - \omega_A)\psi_i^A(\omega) = i\psi_i^A(0) + \sum_{s \neq i} V_s \psi_{i,s}^{Ph}(\omega) + \sqrt{2}\psi_{i,i}^{Ph}(\omega)V_i,$$

$$(\omega - 2\omega_i)\psi_{i,i}^{Ph}(\omega) = \sqrt{2}V_i^* \psi_i^A(\omega), \quad (6)$$

$$(\omega - \omega_i - \omega_j)\psi_{i,j}^{Ph}(\omega) = V_j^* \psi_i^A(\omega) + V_i^* \psi_j^A(\omega) \quad (i \neq j).$$

Здесь первые n уравнений описывают частотную эволюцию атомной амплитуды вероятности, а члены в правой части описывают начальное состояние и излучения фотона в незаполненную и заполненную моды. Вторые n уравнений описывают динамику излучения фотона в заполненную моду (стимулированное излучение атома). Наконец, оставшиеся $n(n-1)/2$ уравнений описывают излучение фотона в незаполненную моду (спонтанное излучение атома).

Зависимость матричного элемента энергии взаимодействия атома с различными квантованными модами, попадающими в контур резонансной моды,

$$V_s = V(\omega_s) = -\frac{d\mathbf{e}(s, \mathbf{r})}{i\hbar\sqrt{2}} \quad (7)$$

от частоты моды будет иметь резонансный характер. На рис.1 показана зависимость энергии дипольного взаимодействия двухуровневого атома с квантованными модами. Здесь сплошной линией показан контур моды шепчущей галереи, а вертикальными линиями – частоты квантованных мод. Расстояния между модами убывают по мере увеличения объема квантования, и в пределе можно говорить о континууме квантованных мод, попадающих в резонансный контур микросферы.

Исключение фотонных амплитуд из системы (6) дает систему n линейных уравнений для амплитуды вероятности найти атом в возбужденном состоянии ($\epsilon \rightarrow 0^+$):

$$(\omega - \omega_i - \omega_A)\psi_i^A(\omega) = i\psi_i^A(t=0) + \sum_s \frac{V_s V_s^* \psi_i^A(\omega) + V_s V_i^* \psi_s^A(\omega)}{(\omega - \omega_i - \omega_s + i\epsilon)}. \quad (8)$$

После решения (8) нет необходимости возвращаться во временную область для нахождения спектра флуоресценции, так как амплитуды двухфотонных состояний при $t \rightarrow \infty$ выражаются через частотные компоненты атомных состояний:

$$\psi_{i,j}^{Ph}(t \rightarrow \infty) = V_j^* \psi_i^A(\omega_i + \omega_j) + V_i^* \psi_j^A(\omega_i + \omega_j) \quad (i \neq j), \quad \psi_{i,i}^{Ph}(t \rightarrow \infty) = \sqrt{2}V_i^* \psi_i^A(2\omega_i). \quad (9)$$

Из этих выражений видно, что двухфотонные конечные состояния запутаны и можно ожидать сильных корреляций между ними.

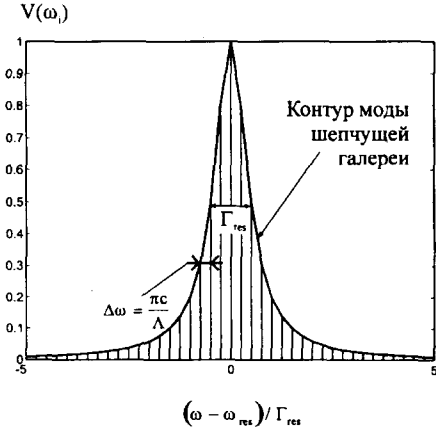


Рис.1. Зависимость энергии взаимодействия атома с квантованными модами, модифицированными присутствием диэлектрической микросферы, от частоты

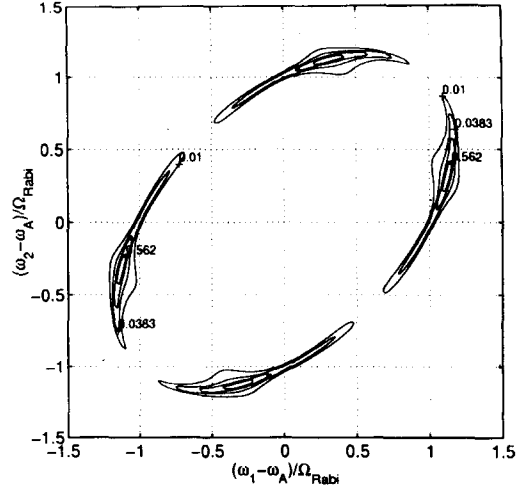


Рис.2. Зависимость спектра двухфотонной флюоресценции от частот излученных фотонов при оптимальном возбуждении микросферы ($\psi_i^A(t=0) \propto V_i^*$, $\epsilon = 6$, $a \approx \lambda = 0.5 \text{ мкм}$, $\omega = 3.77 \cdot 10^{15} \text{ с}^{-1}$, $\gamma_0 = 1.5 \cdot 10^8 \text{ с}^{-1}$, $\Omega_{Rabi} = 1.3 \cdot 10^{11} \text{ с}^{-1}$, $r/a = 0.8$)

Через асимптотические выражения для фотонных амплитуд (9) находятся асимптотические вероятности заполнения различных состояний двухфотонного континуума, то есть спектр двухфотонной флюоресценции

$$P(\omega_i, \omega_j) = \frac{|\psi_{i,j}^{Ph}(t \rightarrow \infty)|^2}{\Delta\omega^2}. \quad (10)$$

На рис.2 показан двухфотонный спектр излучения в случае оптимального возбуждения микросферы из алмаза ($\epsilon = 6$) с радиусом a одним фотоном. Параметры атома и микросферы выбраны таким образом, чтобы имело место резонансное взаимодействие с ТМ(1,11,0) модой шепчущей галереи (мода без нулей в радиальном направлении).

Прежде всего из этого рисунка видно, что частоты излученных фотонов лежат на эллипсе, то есть сильно коррелированы. Эта корреляция в пределе сильного взаимодействия (когда вакуумная частота Раби, определяемая соотношением $\Omega_{Rabi}^2 = \sum_i |V_i|^2$, велика по сравнению с шириной резонанса микросферы, $\Omega_{Rabi} \gg \Gamma_{res}$) описывается простым уравнением:

$$(\omega_1 + \omega_2 - 2\omega_A)^2 + 3(\omega_1 - \omega_2)^2 = 4\Omega_{Rabi}^2. \quad (11)$$

Кроме того, в спектре излучения присутствуют пики, которые можно было бы ожидать исходя из теории одетых состояний [11]. Пики, возникающие в картине одетых состояний, соответствуют двум фотонам, один из которых образуется при переходе с верхнего подуровня второго уровня на верхний подуровень первого уровня, а другой – с верхнего подуровня первого уровня в основное состояние (переходы 3, 4 на рис.3). Аналогичная пара фотонов излучается при переходе между нижними подуровнями (переходы 5, 6 на рис.3). Важным отличием наших результатов от

картины одетых состояний является то, что переходов между верхними и нижними подуровнями (они показаны пунктирными линиями на рис.3) мы не наблюдаем.

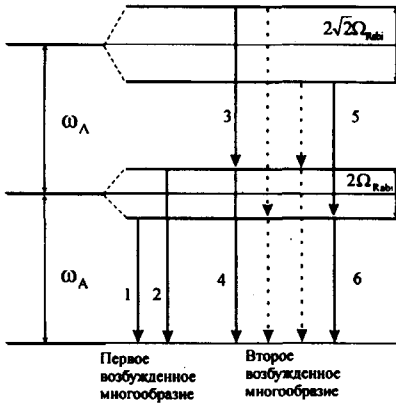


Рис.3. Структура спектра одетых состояний

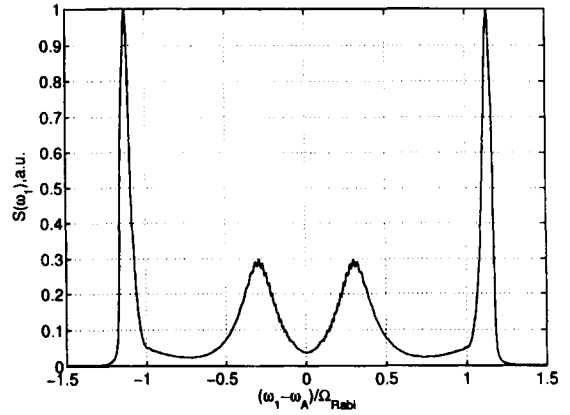


Рис.4. Однофотонный спектр при оптимальном возбуждении микросферы ($\psi_i^A(t=0) \propto V_i^*$, $\epsilon = 6$, $a \approx \lambda = 0.5 \text{ мкм}$, $\omega = 3.77 \cdot 10^{15} \text{ с}^{-1}$, $\gamma_0 = 1.5 \cdot 10^8 \text{ с}^{-1}$, $\Omega_{Rabi} = 1.3 \cdot 10^{11} \text{ с}^{-1}$, $r/a = 0.8$)

Из двухфотонного спектра путем усреднения по одной частоте легко найти однофотонный спектр:

$$S_1(\omega_1) = \int d\omega_2 P(\omega_1, \omega_2). \quad (12)$$

Такого рода спектры анализировались в [12, 13] в рамках метода матрицы плотности. В этих работах было показано, что в однофотонном спектре флюоресценции помимо обычных компонент Раби возникают компоненты как с разностной частотой $\omega_A \pm (\sqrt{2} - 1)\Omega_{Rabi}$, так и с суммарной частотой $\omega_A \pm (\sqrt{2} + 1)\Omega_{Rabi}$.

На рис.4 показан найденный нами однофотонный спектр при оптимальном возбуждении микросферы одним фотоном, то есть в том случае, когда в начальный момент времени на атом действует максимальное поле. В спектре хорошо выражены две компоненты, одна из которых близка к частоте $\omega_A \pm \Omega_{Rabi}$, а другая – к разностной частоте $\omega_A \pm (\sqrt{2} - 1)\Omega_{Rabi}$. При нашем подходе суммарные частоты не возникают.

Для экспериментальной проверки существования эллиптических корреляций между энергиями излученных фотонов недостаточно измерения спектра одного из фотонов, так как в нем основные особенности двухфотонного спектра замазываются. Для полной реконструкции эллиптических структур следует проводить измерения спектра одного из фотонов при различных фиксированных энергиях второго фотона.

Таким образом, мы показали, что в спектре двухфотонной флюоресценции в системе атом+ микросфера излученные фотоны сильно коррелированы по энергии. Эта корреляция выражается в том, что в двумерном спектре возникают ярко выраженные эллиптические структуры. Полученные результаты применимы и к другим случаям двухфотонной флюоресценции в системе атом + резонатор.

Авторы выражают благодарность Российскому фонду фундаментальных исследований за финансовую поддержку настоящей работы.

-
1. V.B.Braginsky, M.L.Gorodetsky, and V.S.Иченко, Phys. Lett **A137**, 393 (1989).
 2. L.Collot, V.Lefevre, M.Brune et al., Euro. Phys. Lett. **23**, 327 (1993).
 3. M.L.Gorodetsky, A.A.Savchenkov, and V.S.Иченко, Opt. Lett. **21**, 453 (1996).
 4. В.В.Климов, В.С.Летохов, Письма в ЖЭТФ **68**, 115 (1998).
 5. V.V.Klimov, M.Ducloy, V.S.Letokhov, Phys. Rev. **A59**, 2996 (1999).
 6. C.J.Hood, M.S.Chapman, T.W.Lynn, and H.J.Kimble, Phys. Rev. Lett. **80**, 4157 (1998).
 7. F.Treussart, J.Hare, L.Collot et al., Optics Letters **19**, 1651 (1994).
 8. А.С.Давыдов, *Квантовая механика*, М.: Наука, 1973.
 9. S.C.Ching, H.M.Lai, and K.Young, J. Opt. Soc. Am. **B4**, 1995 (1987); **4**, 2004 (1987).
 10. D.P.Craig and T.Thirunamachandran, *Molecular Quantum Electrodynamics*, Academic Press New York, 1984.
 11. S.Haroche, *Cavity quantum electrodynamics*, in: *Fundamental Systems in Quantum Optics*, Elsevier Science Publishers, B.V, 1992, 766.
 12. G.S.Agarwal, J. Mod. Opt.**45**, 449 (1998).
 13. M.Löffler, G.M.Meyer, and H.Walther. Phys. Rev. **A55**, 3923 (1997).