

РЕЗОНАНСНАЯ ФЛЮОРЕСЦЕНЦИЯ В СИСТЕМЕ АТОМ + ДИЭЛЕКТРИЧЕСКАЯ МИКРОСФЕРА, ВОЗБУЖДАЕМАЯ ОДНИМ ФОТОНОМ

В.В.Климов*, В.С.Летохов

Институт спектроскопии РАН

142092 Троицк, Московская область, Россия

*Физический институт им. П.Н.Лебедева РАН

117294 Москва, Россия

Поступила в редакцию 22 июня 1998 г.

Рассмотрено резонансное взаимодействие двухуровневого атома с континуумом мод свободного пространства, модифицированных присутствием диэлектрической микросферы (модифицированные моды свободного пространства – ММСП). В том случае, когда в начальный момент времени возбуждены квантованные ММСП внутри контура одной из резонансных мод микросферы, спектр излученных фотонов существенно зависит от способа возбуждения. При оптимальном возбуждении происходит эффективное возбуждение атома с последующим формированием раби-дублета в спектре флюоресценции. При отклонении от условия оптимальности спектр становится триплетным. При сильном отклонении от оптимальности возбуждения атом практически не возбуждается, а спектр флюоресценции имеет синглетный характер.

PACS: 42.50.Ct

Существует несколько причин большого интереса к исследованию взаимодействия атомов с диэлектрической микросферой. Прежде всего это связано с тем, что микросфера является резонатором с большой добротностью в оптической области [1, 2]. Наиболее интересен режим сильного взаимодействия атома и микросферы. При этом возможно вначале возбудить или атом или микросферу-резонатор [3]. В настоящей работе представлены результаты исследования динамики системы атом + микросфера при начальном возбуждении микросферы одним квантом.

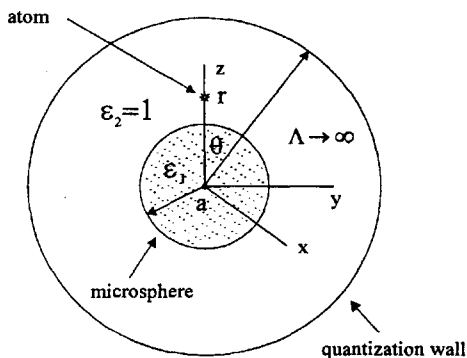


Рис.1. Геометрия квантовой задачи взаимодействия двухуровневого атома с диэлектрической микросферой

В целом процедура квантования электромагнитного поля в сферической геометрии хорошо известна [4]. В нашей задаче в качестве объема квантования можно рассмотреть идеально проводящую сферу конечного, но большого радиуса $\Lambda \rightarrow \infty$

(рис. 1). Оператор поперечного электрического поля может быть представлен в виде [4]

$$\hat{\mathbf{E}} = \sum_s \frac{a_s \mathbf{e}(s, \mathbf{r}) - a_s^+ \mathbf{e}^*(s, \mathbf{r})}{i\sqrt{2}}. \quad (1)$$

где, a_s, a_s^+ – коэффициенты уничтожения и рождения фотонов в ММСП с частотами ω_s и обычными соотношениями коммутации.

Для определенности мы будем рассматривать взаимодействие радиально ориентированного дипольного момента атома внутри микросферы с ТМ модой шепчущей галереи.

Для напряженности электрического поля s -ой ТМ моды $\mathbf{e}(s, \mathbf{r})$ легко получить выражения через сферические гармоники (Y_{nm}) и сферические функции Бесселя и Ханкеля (j и h) :

$$\mathbf{e}_{TM}(n, m, \nu) = \begin{cases} -\frac{1}{k_0 \epsilon_1} \nabla \times \{[\beta_{TM, n} J_n(k_1 r)] \hat{\mathbf{L}} Y_{nm}(\vartheta, \varphi)\}, & r < a, \\ -\frac{1}{k_0 \epsilon_2} \nabla \times \{[\alpha_{TM, n}^{(1)} h_n^{(1)}(k_2 r) + \alpha_{TM, n}^{(2)} h_n^{(2)}(k_2 r)] \hat{\mathbf{L}} Y_{nm}(\vartheta, \varphi)\}, & r > a. \end{cases} \quad (2)$$

В (2) n – орбитальное квантовое число, m – азимутальное, ν – радиальное, $k_{1,2} = \sqrt{\epsilon_{1,2}} k = \sqrt{\epsilon_{1,2}} \omega(\nu)/c$ – волновой вектор вне и внутри сферы, $\mathbf{L} = -i\mathbf{r} \times \nabla$ – оператор углового момента и a – радиус микросферы. Совокупность квантовых чисел (n, m, ν) формирует использованный выше векторный индекс $s = (n, m, \nu)$.

Коэффициенты α_n и β_n находятся обычным образом из условия непрерывности тангенциальных компонент поля на границе сферы и нормировки волновых функций в сфере радиуса Λ на один фотон в квантованной моде:

$$\alpha_{TM}^{(1)}/\alpha_{TM}^{(2)} = 1 - 2q_n; \quad \frac{\beta_{TM}}{\alpha_{TM}^{(2)}} = \frac{2iq_n}{ka(\epsilon(z_2 j_n(z_2))' j_n(z_1) - (z_1 j_n(z_1))' j_n(z_2))}, \quad (3)$$

$$q_n = \frac{\left[\epsilon \frac{d}{dz_2} [z_2 j_n(z_2)] j_n(z_1) - \frac{d}{dz_1} [z_1 j_n(z_1)] j_n(z_2) \right]}{\left[\epsilon \frac{d}{dz_2} [z_2 h_n^{(1)}(z_2)] j_n(z_1) - \frac{d}{dz_1} [z_1 j_n(z_1)] h_n^{(1)}(z_2) \right]}, \quad (4)$$

$$|\alpha_{TM, n}^{(1)}|^2 = |\alpha_{TM, n}^{(2)}|^2 = \frac{2\pi \hbar c}{\Lambda} \frac{k^3}{n(n+1)}. \quad (5)$$

Здесь q_n – коэффициенты отражения Ми, $z_1 = \sqrt{\epsilon} ka$, $z_2 = ka$ и ϵ – диэлектрическая проницаемость микросферы.

Требование исчезновения тангенциальных компонент электрического поля ТМ мод на внутренней поверхности сферы квантования позволяет найти частоты квантованных мод и плотность конечных состояний

$$\omega_s = \left(\nu + \frac{n+1}{2} \right) \frac{\pi c}{\Lambda} + \dots, \quad \rho_{TM}(\omega) = d\nu/d(\hbar\omega_s) = \Lambda/\pi \hbar c. \quad (6)$$

В случае выполнения резонансных условий происходит существенное увеличение плотности энергии внутри диэлектрической микросферы, то есть возникают моды шепчущей галереи [5]. На рис.2 качественно показана зависимость энергии взаимодействия атома с ММСП в резонансном и нерезонансном случаях. Нашей основной задачей является корректное рассмотрение взаимодействия атома с квантованными модами, попадающими в контур моды шепчущей галереи.

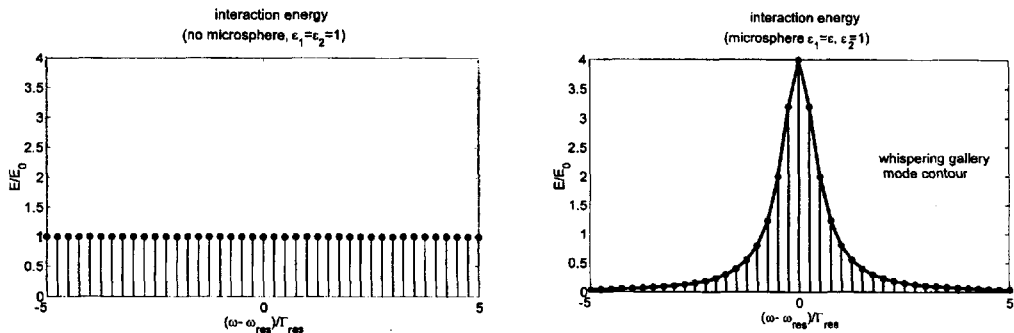


Рис.2. Иллюстрация резонансного возрастания энергии взаимодействия атома с квантованными модами, модифицированными присутствием диэлектрической микросферы

В окрестности резонанса коэффициент отражения M_i принимает простой вид:

$$q_n \approx -i\text{Im}(\Omega_{res})/(\omega - \Omega_{res}), \quad (7)$$

где Ω_{res} – комплексная частота, характеризующая резонансную моду: $\Omega_{res} = \omega_{res} - i\Gamma_{res}^{(n)}/2$, а $\Gamma_{res}^{(n)}$ – характеризует радиационную ширину резонансной моды.

В случае резонансного взаимодействия двухуровневого атома с модами шепчущих галерей дипольный гамильтониан взаимодействия двухуровневого атома и излучения может быть представлен в обычном виде [6]

В приближении вращающейся волны основное состояние, однофотонный и двухфотонный континуумы и т.д. не взаимодействуют и допускают раздельное рассмотрение. В настоящей работе мы ограничимся рассмотрением однофотонного континуума. Соответствующий гамильтониан имеет вид

$$H_1 = \begin{pmatrix} \hbar\omega_A & V_1 & V_2 & V_3 \\ V_1^* & \hbar\omega_1 & 0 & 0 \\ V_2^* & 0 & \hbar\omega_2 & 0 \\ V_3^* & 0 & 0 & \hbar\omega_3 \end{pmatrix}, \quad (8)$$

Здесь ω_A – частота атомного перехода с учетом чисто электростатического сдвига частоты, обусловленного взаимодействием с микросферой [7, 8], а матричные элементы взаимодействия V_i имеют вид:

$$V_i = V(\omega_i) = -fd_{rad}e_{rad}(n, m = 0, \nu_i, \mathbf{r})/i\sqrt{2}. \quad (9)$$

В (9) $f = 3\epsilon/(2\epsilon + 1)$ – фактор локального поля d_{rad} – радиальная компонента дипольного момента перехода, e_{rad} – радиальная компонента напряженности электрического поля квантованной моды (2) и система координат выбрана таким образом, чтобы атом располагался на оси системы. Это приводит к тому, что атом взаимодействует лишь с $m = 0$ ТМ модой.

Вектор состояния нашей системы имеет следующую структуру:

$$|\text{возбужденный атом, фотон с энергией } \omega_1, \text{ фотон с энергией } \omega_2 \dots \rangle. \quad (10)$$

Мы будем считать, что в начальный момент времени возбуждается микросфера, а энергия ее возбуждения распределена по квантованным модифицированным модам

свободного пространства (ММСП) следующим образом:

$$\psi_A = 0; \quad \psi_j(t = 0) = \psi_{0,j} = \psi_0(\omega_j); \quad \sum_j |\psi_{0,j}|^2 = 1. \quad (11)$$

Средняя энергия суперпозиции состояний (11) равна $\hbar\omega_{res}$ независимо от выбора распределения $\psi_{0,j}$, в то время как распределение этой энергии по пространству (пространственная корреляционная функция электрического поля) существенно зависит от $\psi_{0,j}$. При начальных условиях (11) уравнения для фурье-компонент амплитуд вероятностей примут вид

$$(\omega - \omega_A)\psi_A(\omega) = \sum_j \frac{V_j}{\hbar} \psi_j(\omega), \quad (\omega - \omega_j)\psi_j(\omega) = \frac{V_j^*}{\hbar} \psi_A(\omega) - i\psi_{0,j}, \quad j = 1, 2, \dots \quad (12)$$

Рассмотрим сначала спектр излучения фотонов в случае произвольной формы линии возбуждения микросферы. Из (12) легко найти выражение для спектра флюоресценции при $t \rightarrow \infty$:

$$\frac{dP(\omega)}{d(\hbar\omega)} = \rho_{TM}(\omega) \left| \frac{V^*(\omega)}{\hbar} \psi_A(\omega) - i\psi_0(\omega) \right|^2. \quad (13)$$

Матричные элементы $V(\omega)$ в нашем случае имеют лоренцеву форму (см. (7))

$$V(\omega) \approx \alpha/(\omega - \Omega_{res}). \quad (14)$$

Предположим, что линия возбуждения также имеет лоренцеву форму:

$$\psi_{0,j} = \psi_0(\omega_j) = \beta/(\omega_j - \Omega_\psi^*). \quad (15)$$

Подставляя (14) и (15) в (13), для спектра флюоресценции получим выражение

$$\frac{dP(\omega)}{d(\hbar\omega)} = \rho_{TM}(\omega) \left| \frac{\alpha^*}{\omega - \Omega_{res}^*} \frac{\psi_A(\omega)}{\hbar} - i \frac{\beta}{\omega - \Omega_\psi^*} \right|^2. \quad (16)$$

Для того, чтобы сформировался раби-дублет, необходимо, чтобы в (16) не было полюсов между его компонентами, то есть чтобы не было полюсов при $\omega = \Omega_{res}$ и при $\omega = \Omega_\psi$. Это возможно лишь в оптимальном случае, если комплексная резонансная частота внешнего источника возбуждения равна комплексной частоте резонанса микросферы

$$\Omega_\psi = \Omega_{res}. \quad (17)$$

При невыполнении условия (17) дополнительные полюсы не сокращаются и спектр флюоресценции будет иметь или триpletный или singletный вид.

Для получения конкретных аналитических результатов допустим, что начальное распределение возбуждения по ММСП имеет вид

$$\psi_0(\omega) = \frac{1}{\hbar\Omega_{Rabi}} \sqrt{\frac{\Gamma_\psi}{\Gamma_{res}}} \frac{\alpha^*}{\omega - \Omega_\psi^*}, \quad \Omega_\psi = \omega_\psi - i \frac{\Gamma_\psi}{2}, \quad \Gamma_\psi > 0, \quad (18)$$

где радиальная частота Раби имеет вид:

$$\hbar^2 \Omega_{Rabi}^2 = f^2 \frac{d_{rad}^2}{2} n(n+1)(2n+1) \frac{\pi \hbar \Gamma_{res}^{(n)}}{2\epsilon^2 r^3} J_{n+1/2}^2(\sqrt{\epsilon} k_{res} r) \left(\frac{Y_{n+1/2}(k_{res} a)}{J_{n+1/2}(\sqrt{\epsilon} k_{res} a)} \right)^2. \quad (19)$$

Исключая фотонные амплитуды вероятности из (12) и проводя интегрирования по частотам, для фурье-компоненты атомной амплитуды вероятности получим следующее выражение:

$$\psi_A(\omega) = -\frac{\Omega_{Rabi} \sqrt{\Gamma_{res}\Gamma_\psi}}{D(\omega) \Omega_{res} - \Omega_\psi^*}, \quad D(\omega) = (\omega - \omega_A)(\omega - \Omega_{res}) - \Omega_{Rabi}^2. \quad (20)$$

Из этого уравнения видно, что амплитуда возбужденного состояния атома достигает максимальных значений при $\Omega_\psi = \Omega_{res}$. При этом условии энергия возбуждения в максимальной степени концентрируется внутри микросферы и атом полностью возбуждается, в результате чего формируется дублетная структура спектра флюоресценции.

При невыполнении условия (17), атом возбуждается не полностью и в спектре флюоресценции наряду с компонентами Раби появляется центральная компонента, то есть образуется триплет. Далее, подставляя (20) в (16), можно найти спектр флюоресценции:

$$\frac{dP(\omega)}{d(\hbar\omega)} = \frac{\Gamma_\psi}{2\pi\hbar} \left| \frac{\Omega_{Rabi}^2}{(\omega - \Omega_{res}^*)D(\omega)} \frac{\Gamma_{res}}{\Omega_{res} - \Omega_\psi^*} + i \frac{1}{\omega - \Omega_\psi^*} \right|^2, \quad (21)$$

Триплетная структура спектра здесь явно выражена. Заметим, что триплетная структура (21) не является триплетом Моллоу [9], так как в настоящей работе мы рассматриваем случай однофотонного континуума ММСИ, в то время как спектр Моллоу появляется при высоких интенсивностях.

В оптимальном случае (17) для спектра излученных фотонов из (21) легко получить выражение

$$\frac{dP(\omega)}{d(\hbar\omega)} = \frac{(\omega - \omega_A)^2 \Gamma_{res} / 2\pi\hbar}{[(\omega - \omega_A)(\omega - \omega_{res}) - \Omega_{Rabi}^2]^2 + (\omega - \omega_A)^2 \Gamma_{res}^2 / 4}. \quad (22)$$

Важной особенностью (22) является то, что оно всегда имеет дублетный характер, даже при слабом взаимодействии, то есть для режима экспоненциального распада Вигнера – Вайскопфа.

В рамках настоящего подхода можно исследовать и другие случаи возбуждения ММСИ. В частности, если вместо (18) использовать начальное условие вида (анти-согласование по фазе ММСИ и внешнего источника возбуждения)

$$\psi_0(\omega) = \sqrt{\frac{\Gamma_\psi}{\Gamma_{res}}} \frac{1}{\hbar\Omega_{Rabi}} \frac{\alpha^*}{\omega - \Omega_\psi^*}, \quad \Omega_\psi = \omega_\psi + i\frac{\Gamma_\psi}{2}, \quad \Gamma_\psi > 0, \quad (23)$$

то энергия возбуждения внутри микросферы будет минимальной (в три раза меньше, чем в случае (18)), в результате чего фурье-компонента амплитуды возбужденного состояния атома будет описываться выражением

$$\psi_A(\omega) = -\frac{\Omega_{Rabi} \sqrt{\Gamma_{res}\Gamma_\psi}}{D(\omega) \omega - \Omega_\psi}, \quad (24)$$

которое в явном виде содержит три частоты (при достаточно большой частоте Раби).

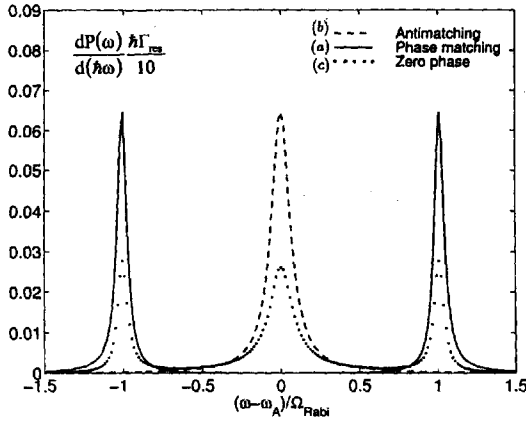


Рис.3. Зависимость спектра флуоресценции от способа резонансного ($\omega_A = \omega_{res}$) возбуждения микросферы при условии $|\Omega_\psi| = |\Omega_{res}|$. а) $\Omega_\psi = \Omega_{res}$, когда достигается максимально возможная концентрация энергии фотона в микросфере, то есть при условии (17); б) $\Omega_\psi^* = \Omega_{res}$, когда достигается минимально возможная концентрация энергии фотона в микросфере, то есть при условии (23); в) промежуточный случай (26). Для всех случаев ($r/a = 0.8$, $\omega_0/\gamma_0 = 5 \cdot 10^7$, радиальная ориентация диполя, ТМ_{1,12,12}) – мода шепчущей галереи, $(ka)_{res} = 6.924298$, $\epsilon = 6$)

Для спектра флуоресценции в случае антисогласования (23) соответственно получим выражение ($\omega_A = \omega_{res}$)

$$\frac{dP(\omega)}{d(\hbar\omega)} = \frac{\Gamma_\psi}{2\pi\hbar} \frac{1}{|\omega - \Omega_\psi|^2}, \quad (25)$$

которое всегда является синглетом. Случай равномерного распределения фазы

$$\psi_0(\omega) = \frac{1}{\hbar\Omega_{Rabi}} \sqrt{\frac{\Gamma_\psi}{\Gamma_{res}}} \frac{\alpha^*}{|\omega - \Omega_\psi^*|}, \quad \Omega_\psi = \omega_\psi - i\frac{\Gamma_\psi}{2}, \quad \Gamma_\psi > 0 \quad (26)$$

носит промежуточный характер между (18) и (23).

На рис. 3 показаны зависимости спектра флуоресценции от степени согласования поля источника возбуждения с ММСП по фазе. На этом рисунке хорошо видно, как дублетная структура (а), характерная для оптимального согласования (17), переходит в триплетную структуру (с) для неоптимального согласования (26), а затем в синглетную структуру (б) для случая антисогласования (23).

Авторы выражают благодарность Российскому Фонду Фундаментальных исследований и Министерству Обороны США (через посредничество Университета Аризоны) за финансовую поддержку настоящей работы.

1. V.B.Braginsky, M.L.Gorodetsky, and V.S.Pshenko, Phys. Lett. **A137**, 393 (1989).
2. L.Collot, V.Lefevre, M.Brune et al., Phys. Lett. **23**, 327 (1993).
3. S.Haroche, *Cavity quantum electrodynamics*, in: *Fundamental Systems in Quantum Optics*, Elsevier Science Publishers 1992.
4. А.С.Давыдов, *Квантовая механика*, М.: Наука, 1973.
5. Л.А.Вайнштейн, *Электромагнитные волны*, М.: Радио и связь, 1988.
6. D.P.Craig and T.Thirunamachandran, *Molecular Quantum Electrodynamics*, М.: Academic Press, 1984.
7. V.V.Klimov, M.Ducloy, and V.S.Letokhov, J. Mod. Optics **43**, №3, 549 (1996).
8. V.V.Klimov, M.Ducloy, V.S.Letokhov, J. Mod. Optics **43**, №11, 2251 (1996).
9. B.R.Mollow, Phys. Rev. **188**, №5, 1969 (1969).