

МОСКОВСКИЙ ФИЗИКО-ТЕХНИЧЕСКИЙ ИНСТИТУТ  
(ГОСУДАРСТВЕННЫЙ УНИВЕРСИТЕТ)  
ФАКУЛЬТЕТ ОБЩЕЙ И ПРИКЛАДНОЙ ФИЗИКИ  
КАФЕДРА ПРОБЛЕМ ТЕОРЕТИЧЕСКОЙ ФИЗИКИ

Магистерская диссертация

**Спазер в надпороговом режиме: сдвиг частоты генерации**

Студент \_\_\_\_\_ Парфеньев В.М.

Научный руководитель  
член-корр. РАН \_\_\_\_\_ Лебедев В.В.

Рецензент  
к.ф.-м.н. \_\_\_\_\_ Габитов И.Р.

Зав. кафедрой  
д.ф.-м.н, профессор \_\_\_\_\_ Фейгельман М.В.

Москва 2013

# Содержание

<b>Введение</b>	<b>2</b>
<b>1. Принципы работы спазера</b>	<b>3</b>
<b>2. Взаимодействие света с активным атомом</b>	<b>5</b>
2.1. Взаимодействие атома с электрическим полем . . . . .	5
2.2. Приближение вращающейся волны . . . . .	6
2.3. 4-х уровневая модель . . . . .	7
<b>3. Оптически активная среда</b>	<b>8</b>
3.1. Диэлектрическая проницаемость . . . . .	9
<b>4. Генерация нанолазера</b>	<b>9</b>
4.1. Собственная мода и порог генерации . . . . .	9
4.2. Вырождение моды . . . . .	10
<b>5. Надпороговый режим</b>	<b>10</b>
5.1. Базовые определения . . . . .	11
5.2. Поправка к оператору $\hat{H}^0$ . . . . .	11
5.3. Отступление о природе сдвига частоты генерации . . . . .	12
5.4. Амплитуда поля . . . . .	12
5.5. Сдвиг частоты генерации . . . . .	14
5.6. Численные параметры модели . . . . .	16
<b>6. Ширина спектральной линии</b>	<b>16</b>
6.1. Модель фазовой диффузии . . . . .	17
6.2. Коэффициент диффузии . . . . .	18
6.3. Определение коэффициентов $G_0$ и $B$ . . . . .	18
<b>Заключение</b>	<b>20</b>
<b>Список литературы</b>	<b>21</b>
<b>Приложение: Р-представление</b>	<b>22</b>

## Введение

Научно-технический прогресс оказывает колоссальное влияние на развитие человечества, изменяет облик нашей планеты и открывает для людей новые просторы: подводные и подземные глубины, моря и океаны, воздух и космос. Современная жизнь человека уже немыслима без компьютеров, мобильных телефонов и других электронных устройств. Однако жизнь не стоит на месте, и человеком все время движет желание сделать эти устройства еще быстрее, еще компактнее.

Одна из идей для увеличения скорости электронных устройств состоит в замене электронов на фотоны. Последние движутся со скоростью света, и это обеспечивает максимальную скорость передачи и обработки информации. Однако, из-за наличия дифракционного предела фотоны невозможно локализовать на привычных масштабах электроники, которые в настоящее время составляют несколько нанометров.

На стыке этого противоречия родилась новая область физики — наноплазмоника. Она занимается изучением систем, в которых оптическая энергия концентрируется на наномасштабе благодаря возбуждению поверхностных плазмонов. Хорошо известно, что необходимым условием существования таких поверхностных мод является наличие границы раздела металл-диэлектрик, вблизи которой и образуются указанные моды [1]. Наличие в системе металла приводит к диссипации энергии, что накладывает ограничения на используемые материалы: как правило это серебро и золото, у которых низкие потери в оптическом диапазоне.

Для того, чтобы заменить электронные устройства их аналогами, построенными на базе плазмоники, необходимо было разработать аналог транзистора (MOSFET) — активное устройство, способное генерировать поверхностные плазмоны и усиливать нанолокализованные оптические поля. Возможность создания такого устройства была теоретически предсказана в 2003 году Д. Бергманом и М. Штокманом в работе [2]. По аналогии с лазером авторы предложили называть подобные устройства спазерами (SPASER = Surface Plasmon Amplification by Stimulated Emission of Radiation). Использованию спазеров в качестве замены транзисторов посвящена работа М. Штокмана [3]. Об успешной экспериментальной реализации спазера впервые сообщалось в работе М. Ногинова и соавторов [4].

Полуклассическая теория спазера (плазмонная мода — классическая) изложена в работе М. Штокмана [3]. Однако, мы обнаружили некоторые расхождения между предсказаниями данной теоретической работы и экспериментальными результатами работы [4]. Согласно теории М. Штокмана частота генерации спазера не зависит от уровня накачки активной среды и находится между частотой поверхностного плазмона и частотой резонансного перехода в активных молекулах. С другой стороны, в эксперименте наблюдается зависимость частоты генерации устройства от уровня накачки, кроме того оказывается, что частота генерации не обязана лежать между двумя вышеуказанными частотами. Исследованию этого противоречия и посвящена данная дипломная работа. Менее подробное изложение можно найти в статье [5], опубликованной в соавторстве с Вергелесом С.С.

Структура данного текста носит следующий характер. В разделе 1 подробно обсуждаются механизмы работы спазера, проведена аналогия между спазером и обычным лазером, а также указаны наиболее существенные отличия между этими устройствами. Раздел 2 посвящен резонансному взаимодействию света с активным атомом. Описание производится с помощью уравнений Блоха в приближении вращающейся волны [6]. В качестве структуры атомных уровней рассматривается 4-х уровневая модель, которая позволяет в явном виде ввести в рассмотрение мощность накачки. Электромагнитное поле считается классическим. В разделе 3 показано как перейти

от взаимодействия света с отдельным атомом к взаимодействию света с активной средой. Раздел 4 посвящен порогу генерации спазера и пространственной структуре моды поверхностного плазмона. В разделе 5 подробно обсуждается надпороговый режим. В частности, в нем найдена зависимость амплитуды поверхностного плазмона от мощности накачки, а также продемонстрировано явление сдвига частоты генерации. Кроме того, в этом разделе присутствуют численные результаты и проведено их сравнение с экспериментом [4]. Это центральный раздел данной работы. Раздел 6 посвящен обсуждению ширины спектральной линии спазера на основе модели фазовой диффузии [7].

## 1. Принципы работы спазера

Во введении к данной работе было указано, что существует некоторое сходство между принципами работы обычного лазера и спазера. В данном разделе мы сравним эти устройства друг с другом и выявим наиболее существенные отличия между ними.

На рис. 1а схематично изображен лазер. Неотъемлемой частью устройства является резонатор, заполненный активными атомами. Активная среда переводится в состояние с инверсной заселенностью под действием накачки (оптической, электронной и т.п.). Через некоторое время один из атомов спонтанно излучает фотон в моду резонатора, который затем движется внутри резонатора, отражаясь от его краев (зеркала, грани кристалла и т.п.), провоцируя другие атомы излучить в ту же моду, причем когерентно (вынужденное излучение). Некоторые фотоны покидают резонатор за счет неидеальной отражающей способности его краев, и этот поток формирует излучение лазера. Такой уход фотонов обуславливает потери в рассматриваемой системе и напрямую связан с добротностью резонатора. Типичное значение добротности составляет  $Q \sim 10^5$  для оптических резонаторов.

Наличие резонатора накладывает принципиальное ограничение на размер лазера: он не может быть меньше половины генерируемой длины волны. Однако, в 2003 году Д. Бергман и М. Штокман предложили замену резонатору [2], которая позволяет преодолеть это ограничение.

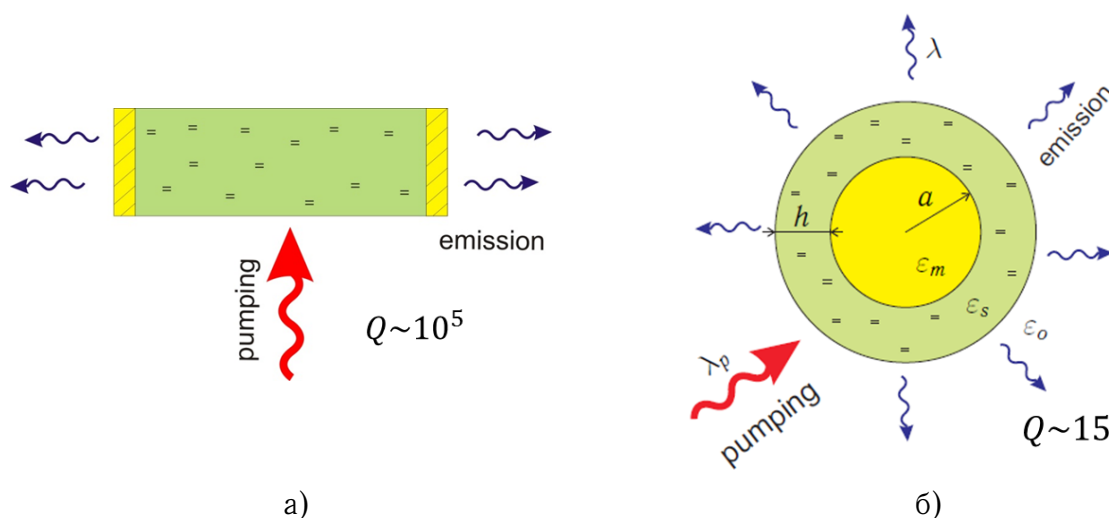


Рис. 1. Схематическое устройство а) лазера и б) спазера

Следуя авторам, рассмотрим металлический шарик радиуса  $a$ , помещенный в электромагнитное поле. Предположим, что размер шарика намного меньше, чем глубина

скин-слоя  $a \ll l_s$ . Тогда электрическое поле проникает внутрь шарика и вызывает внутри него смещение электронов, рис. 2. На смещенные электроны действует кулоновская возвращающая сила со стороны неподвижных ионов кристаллической решетки. Величина этой силы совместно с эффективной массой электронов определяет частоту осцилляций  $\omega_{sp}$ , которая характеризует рассматриваемый поверхностный плазмон. При совпадении частоты  $\omega_{sp}$  и частоты приложенного поля в системе происходит резонанс, который приводит к усилению локального поля.

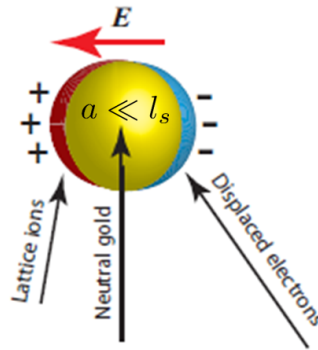


Рис. 2. Принцип работы резонатора, используемого в спазерах

Отметим, что суммарная энергия в такой системе представляет из себя сумму потенциальной энергии электронов в электрическом поле и их механической кинетической энергии. Взаимодействие с магнитным полем оказывается слабым по параметру  $v_F/c$ , где  $v_F$  — скорость Ферми электронов, а  $c$  — скорость света. Таким образом, магнитный вклад в полную энергию оказывается пренебрежимо мал (квазистатическое приближение). По этой же причине масштаб локализации энергии в системе является размер шарика  $a$ , а не электромагнитная длина волны  $\lambda$ .

Движение электронов внутри металлической гранулы неизбежно влечет за собой омические потери. Для того, чтобы их компенсировать, гранулу окружают диэлектрической оболочкой со встроенными активными атомами, рис. 1б. Затем активную среду накачивают тем или иным образом, а дальше ситуация развивается аналогично случаю с лазером. Принципиальным отличием спазера является наличие омических потерь, которые приводят к очень низкой добротности резонатора  $Q \sim 15$ . Другое отличие заключается в том, что излучение спазера, как правило, ненаправленное. Обычно параметры системы подбирают так, что резонансная мода представляет из себя дипольную моду, в этом случае поле на бесконечности по своей структуре совпадает с полем колеблющегося диполя.

Также обратим внимание, что размер наногранулы нельзя уменьшать до бесконечности. С определенного момента электроны начнут рассеиваться на стенках гранулы. Это произойдет при  $a \sim v_F/\omega$ , где  $\omega$  — частота электромагнитного поля. Таким образом, на размер металлического шарика накладываются следующие ограничения:  $v_F/\omega \ll a \ll l_s$ . Для типичных параметров [4], соответствующих золотому шарикуну и частотам порядка 2.3 eV, получим:  $1nm \ll a \ll 25nm$ .

В дальнейших разделах мы построим полуклассическую теорию спазера (электрическое поле рассматривается как классическое, а активная среда — с квантовой точки зрения). В общих чертах мы будем пользоваться подходом, который предложил М. Скалли в 1972 году для описания лазеров, рис. 3.

Стоит отметить, что все результаты данной работы могут быть легко получены для произвольной геометрии устройства, однако для определенности и возможности срав-

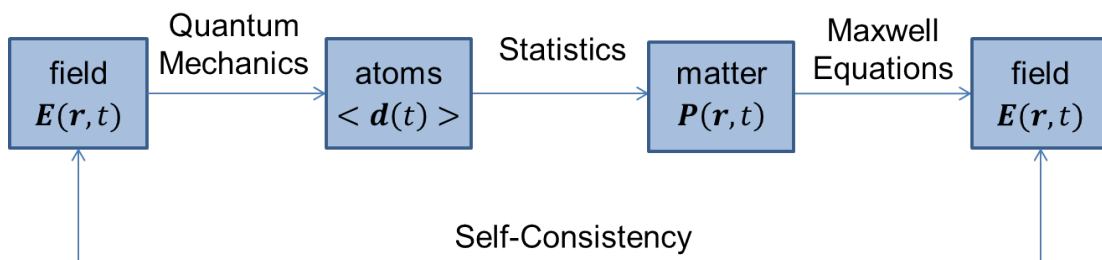


Рис. 3. Диаграмма полуклассического описания лазера

нения с экспериментом мы рассматриваем простейшую геометрию, использованную в [4]. Устройство представляет собой золотую гранулу радиусом  $a = 7nm$ , окруженную диэлектрической оболочкой толщиной  $h = 15nm$  (см. рис. 1б).

## 2. Взаимодействие света с активным атомом

Как было отмечено ранее, оболочка наночастицы содержит оптически активные атомы, структура уровней которых изображена на рис. 4. Мы предполагаем, что система постоянно освещается электромагнитной волной с частотой  $\omega_p$  и интенсивностью  $I_p$ . Роль этой волны состоит в накачке активной среды, т.е. создании инверсной заселенности у активных атомов. Эта волна возбуждает атомы, вызывая переход  $|g\rangle \rightarrow |p\rangle$ . Мы считаем, что атомы быстро и безызлучательно переходят из состояния  $|p\rangle$  в  $|u\rangle$  и из  $|l\rangle$  в  $|g\rangle$  за счет испускания фононов или возбуждения каких-либо других внутренних степеней свободы. Резонансный переход (и создание инверсной заселенности) происходит между состояниями  $|u\rangle$  и  $|l\rangle$ . Мы считаем, что частота этого перехода  $\omega_{ul}$  близка к частоте  $\omega$  излучения спазера.

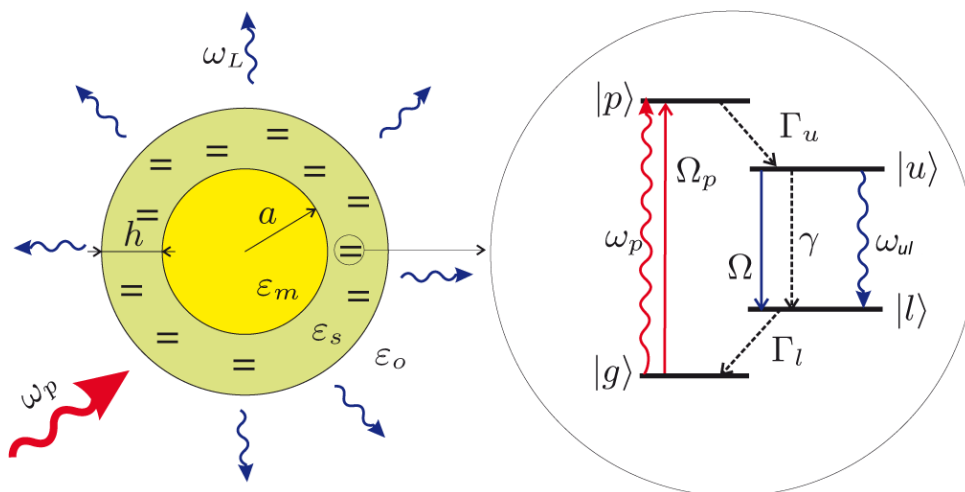


Рис. 4. Исследуемая система и структура уровней активных атомов

### 2.1. Взаимодействие атома с электрическим полем

Перейдем к описанию поведения активных атомов. Для начала ограничимся 2-х уровневой моделью, оставив во внимании только состояния  $|u\rangle$  и  $|l\rangle$ . Гамильтониан

атома во внешнем электрическом поле:

$$\hat{H} = \begin{pmatrix} \hbar\omega_u & -\mathbf{d}\mathbf{E} \\ -\mathbf{d}^*\mathbf{E} & \hbar\omega_l \end{pmatrix}. \quad (1)$$

Введем в рассмотрение матрицу плотности, которую можно представить в виде:

$$\hat{\rho} = \frac{1}{2} + \begin{pmatrix} N/2 & \rho_{ul} \\ \rho_{ul}^* & -N/2 \end{pmatrix}. \quad (2)$$

Величина  $N$  называется населенностью и изменяется от  $-1$  до  $+1$ . Она характеризует вероятность атома находиться в возбужденном состоянии. Чтобы выяснить физический смысл второй величины  $\rho_{ul}$  рассмотрим средний дипольный момент атома:

$$\langle \mathbf{d} \rangle = \text{Tr}(\hat{\mathbf{d}}\hat{\rho}) = \mathbf{d}\rho_{ul}^* + \mathbf{d}^*\rho_{ul}. \quad (3)$$

Следовательно, недиагональные элементы матрицы плотности определяют атомную поляризацию. Из уравнения Лиувилля  $i\hbar\partial_t\hat{\rho} = [\hat{H}, \hat{\rho}]$  получаем следующие соотношения на компоненты матрицы плотности:

$$\partial_t N = \frac{2i}{\hbar} (\mathbf{d}\mathbf{E}\rho_{ul}^* - \mathbf{d}^*\mathbf{E}\rho_{ul}) - \frac{N - N_s}{\tau}, \quad (4)$$

$$\partial_t \rho_{ul} = -i\omega_{ul}\rho_{ul} - \frac{i}{\hbar} N\mathbf{d}\mathbf{E} - \Gamma\rho_{ul}. \quad (5)$$

Последние слагаемые в этих уравнениях добавлены феноменологически [6] и описывают накачку активных атомов. Здесь  $N_s$  — равновесная заселенность (в отсутствии плазмонных колебаний),  $\tau$  — время установления этой равновесной заселенности. Обратное время расфазировки  $\Gamma$  может не совпадать с обратным временем релаксации  $1/\tau$ , поскольку в расфазировку могут вносить вклад процессы, не сопровождающие переход атома из возбужденного состояния в основное (например, столкновение с фононами).

## 2.2. Приближение вращающейся волны

Заметим, что в отсутствии излучения спазера и затухания ( $\mathbf{E} = 0$  и  $\Gamma = 0$ ), недиагональный элемент матрицы плотности остается постоянным по модулю и осциллирует с частотой  $\omega_{ul}$ . Мы предполагаем, что эта частота близка к частоте  $\omega$  излучения устройства, так как именно в этом случае и должна происходить накачка плазмонных колебаний энергией, запасенной в активной среде. Таким образом, мы представляем величины  $\rho_{ul}$  и  $\mathbf{E}$  в виде:

$$\rho_{ul} = \rho e^{-i\omega t}, \quad (6)$$

$$\mathbf{E} = \frac{1}{2}(\mathbf{E}' e^{-i\omega t} + \mathbf{E}'^* e^{i\omega t}). \quad (7)$$

Подставляя в уравнения (4)-(5) и отбрасывая вклады, осциллирующие с частотой  $2\omega_{ul}$ , получаем:

$$\partial_t N = -2\text{Im}[\Omega\rho^*] - (N - N_s)/\tau, \quad (8)$$

$$\partial_t \rho = -\Gamma_\Delta\rho - iN\Omega/2, \quad (9)$$

где  $\Delta = \omega - \omega_{ul}$  — отстройка по частоте от резонанса,  $\Gamma_\Delta = \Gamma - i\Delta$ ,  $\Omega = \mathbf{d}\mathbf{E}'/\hbar$  — частота осцилляций Раби. Как было отмечено ранее, мы предполагаем  $\Delta \ll \omega_{ul}$ . Стационарное решение найдем, приравняв правые части (8)-(9) к нулю:

$$N = \frac{N_s}{1 + \tau\Gamma|\Omega|^2/|\Gamma_\Delta|^2}, \quad (10)$$

$$\rho = \frac{-iN_s\Omega\Gamma_\Delta^*/2}{|\Gamma_\Delta|^2 + \tau\Gamma|\Omega|^2}. \quad (11)$$

### 2.3. 4-х уровневая модель

Определим зависимость параметров 2-х уровневой модели  $N_s$  и  $\tau$  от параметров накачивающей волны. Для этого расширим 2-х уровневую модель атомов, вводя рассмотрение квантовые состояния  $|g\rangle$  и  $|p\rangle$ . Теперь у нас есть две подсистемы  $|g\rangle$ ,  $|p\rangle$  и  $|u\rangle$ ,  $|l\rangle$ , которые связаны друг с другом быстрыми безызлучательными переходами  $|p\rangle \rightarrow |u\rangle$  и  $|l\rangle \rightarrow |g\rangle$ , имеющими скорости  $\Gamma_u$  и  $\Gamma_l$  соответственно. Мы предполагаем, что эти переходы происходят намного быстрее, чем все другие характерные процессы задачи. Для простоты мы также считаем, что в секторе накачки отсутствует отстройка по частоте. Уравнения на эволюцию диагональных элементов матрицы плотности в секторе генерации поверхностных плазмонов принимают вид (в приближении вращающейся волны):

$$\partial_t \rho_{uu} = \Gamma_u \rho_{pp} - \gamma \rho_{uu} - \text{Im}[\Omega \rho^*], \quad (12)$$

$$\partial_t \rho_{ll} = -\Gamma_l \rho_{ll} + \gamma \rho_{uu} + \text{Im}[\Omega \rho^*], \quad (13)$$

где  $\gamma$  — характеризует скорость спонтанного излучения. Уравнение на недиагональный элемент  $\rho$  остается без изменений. Отметим, что  $N = \rho_{uu} - \rho_{ll}$ .

Мы не учитываем обратные переходы  $|u\rangle \rightarrow |p\rangle$  и  $|g\rangle \rightarrow |l\rangle$ , считая температуру системы намного меньше, чем соответствующие разности энергий между уровнями. Уравнения на эволюцию элементов матрицы плотности в секторе накачки могут быть легко написаны по аналогии с (12), (13) и (9):

$$\partial_t \rho_{pp} = -\Gamma_p \rho_{pp} - \text{Im}[\Omega_p \rho_p^*], \quad (14)$$

$$\partial_t \rho_{gg} = \Gamma_l \rho_{ll} + \text{Im}[\Omega_p \rho_p^*], \quad (15)$$

$$\partial_t \rho_p^* = -\Gamma_p \rho_p^* + i(\rho_{pp} - \rho_{gg})\Omega_p^*/2. \quad (16)$$

Здесь  $\Omega_p = |(\mathbf{d}_p \cdot \mathbf{E}_p)|/\hbar$  — частота Раби в секторе накачки,  $\mathbf{d}_p = \langle p|\hat{\mathbf{d}}|g\rangle$  — соответствующий матричный элемент оператора дипольного момента,  $\mathbf{E}_p$  — электрическое поле в накачивающей волне,  $\Gamma_p$  — обратное время расфазировки в секторе накачки,  $\rho_p^* = \rho_{pg}^* e^{-i\omega_p t}$  — недиагональный элемент матрицы плотности в секторе накачки с открученной частотой.

Будем искать стационарное решение записанных уравнений. Складывая выражения (12) и (13), получаем  $\rho_{ll} = \rho_{pp} \Gamma_u/\Gamma_l$ . Из уравнения (9) находим  $\rho = -i\Omega N/(2\Gamma_\Delta)$ . Отметим, что мнимая часть недиагонального элемента матрицы плотности отрицательна (это соответствует накачке), только если инверсия положительна  $N > 0$ .

Теперь из уравнения (12) находим:

$$\rho_{uu} = \rho_{pp} \frac{\Gamma_u (\Gamma_l + |\Omega|^2 \Gamma / (2|\Gamma_\Delta|^2))}{\Gamma_l (\gamma + |\Omega|^2 \Gamma / (2|\Gamma_\Delta|^2))}, \quad (17)$$

$$\rho_{uu} - \rho_{ll} = \Gamma_u \rho_{pp} \left( \frac{1}{\gamma} - \frac{1}{\Gamma_l} \right) \frac{|\Gamma_\Delta|^2}{|\Gamma_\Delta|^2 + |\Omega|^2 \Gamma / (2\gamma)}. \quad (18)$$



Обратим внимание, что инверсия положительна, только если  $\gamma < \Gamma_l$ . Из уравнений для сектора накачки получаем:

$$\rho_{gg} = \rho_{pp} (1 + 2\Gamma_u \Gamma_p / |\Omega_p|^2). \quad (19)$$

Теперь, используя условие  $\text{Tr } \hat{\rho} = 1$ , находим

$$\rho_{pp} = \left[ 2\Gamma_u (1/\Gamma_u + 1/\Gamma_l + \Gamma_p/|\Omega_p|^2) + \Gamma_u (1/\gamma - 1/\Gamma_l) \frac{|\Gamma_\Delta|^2}{|\Gamma_\Delta|^2 + |\Omega|^2 \Gamma / (2\gamma)} \right]^{-1}. \quad (20)$$

В дальнейшем мы будем использовать предположение  $\gamma, \Omega_p \ll \Gamma, \Gamma_p \sim \Gamma_u, \Gamma_l$ . С физической точки зрения это означает, что мы рассматриваем достаточно слабую накачку системы. Данное предположение оправдано, поскольку в экспериментальной работе [4] не наблюдается насыщения накачки.

Для недиагонального элемента матрицы плотности, который определяет поляризацию активной среды, приходим к выражению:

$$\rho = \frac{-i\Omega\Gamma_\Delta^*}{2|\Gamma_\Delta|^2 \left[ 1 + \frac{2\Gamma_p}{|\Omega_p|^2} \left( \gamma + \frac{\Gamma|\Omega|^2}{2|\Gamma_\Delta|^2} \right) \right]}. \quad (21)$$

Сравнивая с выражением (11), приходим к заключению, что параметры двухуровневой модели выражаются через параметры накачивающей волны следующим образом:

$$N_s = \frac{1}{1 + 2\gamma\Gamma_p/\Omega_p^2}, \quad (22)$$

$$\tau = N_s \Gamma_p / \Omega_p^2. \quad (23)$$

### 3. Оптически активная среда

В предыдущем разделе мы рассмотрели поведение оптически активного атома во внешнем поле. Перейдем теперь к описанию оптически активной среды, которая состоит из диэлектрической оболочки с введенными в нее активными атомами. Мы хотим выяснить как активные атомы влияют на диэлектрическую проницаемость оболочки. Зная это, мы сможем записать для электромагнитного поля уравнения Максвелла, решение которых даст нам понимание того, как устроено поле в пространстве. Будем считать, что в достаточно малом объеме (настолько малом, что электрическое поле можно считать однородным) находится большое число активных атомов с произвольно ориентированным дипольным моментом. По ориентациям этого вектора будем производить усреднение.

Отметим, вновь обращаясь к 4-х уровневой модели активного атома, что на самом деле существует корреляция между дипольными моментами в секторе накачки  $\mathbf{d}_p$  и секторе плазмонных колебаний  $\mathbf{d}$ . В дальнейшем мы будем считать, что усреднения по ним могут быть произведены независимо. Это упрощение существенно облегчает дальнейший анализ и позволяет установить основные свойства поведения спазера.

Кроме того, для простоты вычислений мы пренебрегаем рассеянием накачивающей волны на исследуемом объекте. Иными словами, мы предполагаем, что все активные атомы накачиваются одинаково. Но не стоит забывать, что поле плазмонных колебаний неоднородно в пространстве и различно по амплитуде в точках нахождения разных активных атомов. Таким образом, активные атомы нельзя рассматривать как идентичные, они находятся в разных внешних полях.

### 3.1. Диэлектрическая проницаемость

Полную диэлектрическую проницаемость оболочки представим в виде  $\hat{\varepsilon}_s = \varepsilon_s^{(0)} + \hat{\varepsilon}_s^a$ . Первое слагаемое описывает вклад оболочки в отсутствие активных атомов, второе — учитывает поправку за счет поляризации активной среды. Эта поправка может быть явно записана через параметры активной среды:

$$\mathbf{P}_a = \hat{\varepsilon}_s^a \mathbf{E} / (4\pi) = \langle n(\mathbf{d}^* \rho_{ul} + \mathbf{d} \rho_{ul}^*) \rangle_{\mathbf{d}}. \quad (24)$$

Угловые скобки с индексом  $\mathbf{d}$  означают усреднение по направлению дипольного момента. Используя стационарное решение (11), получим:

$$\mathbf{P}_a = \frac{nN_s(\Delta - i\Gamma)}{2} \left\langle \frac{\Omega \mathbf{d}^*}{|\Gamma_\Delta|^2 + \tau\Gamma|\Omega|^2} \right\rangle_{\mathbf{d}} e^{-i\omega t} + c.c. \quad (25)$$

Отметим, что поляризация получилась нелинейной функцией электрического поля плазмонных колебаний. Эта нелинейность определяет механизм установления амплитуды поля в надпороговом режиме: увеличение интенсивности излучения приводит к уменьшению поляризации, а значит и к уменьшению передачи энергии от активной среды к плазмонному колебанию. Подробнее это вопрос рассмотрен в разделе 5.

В случае очень слабых полей (порог генерации) усреднение может быть выполнено аналитически, и для поправки к диэлектрической проницаемости получим:

$$\hat{\varepsilon}_s^a = \frac{2\pi}{3\hbar} \frac{nN_s |d|^2}{(\Delta + i\Gamma)}. \quad (26)$$

Обратим внимание на то, что мнимая часть этого выражения отрицательна. Это как раз соответствует ситуации, когда происходит накачка плазмонного колебания.

## 4. Генерация нанолазера

Знание диэлектрической проницаемости оптически активной среды позволяет найти распределение электромагнитного поля в пространстве. В общем случае волновое уравнение представляет из себя уравнение Гельмгольца, однако в рамках квазистатического приближения мы можем ограничиться решением более простого уравнения Лапласа. Дело в том, что поле меняется на расстояниях много меньших длины волны в вакууме  $c/\omega$ . Следовательно, можно пренебречь правой частью уравнения  $\text{rot } \mathbf{E} = -(1/c)\partial_t \mathbf{B}$ , после чего получаем, что поле  $\mathbf{E}$  потенциально, а значит удовлетворяет уравнению Лапласа. Ранее квазистатическое приближение обсуждалось в разделе 1.

### 4.1. Собственная мода и порог генерации

Определим структуру плазмонной моды (см. рис. 4). Решение уравнения  $\Delta\varphi = 0$ , исчезающее на бесконечности, имеет вид:

$$\begin{aligned} \varphi_m &= r^l Y_{lm}, \\ \varphi_s &= Ar^l Y_{lm} + Br^{-(l+1)} Y_{lm}, \\ \varphi_o &= Cr^{-(l+1)} Y_{lm}. \end{aligned} \quad (27)$$

Граничные условия:

$$\begin{aligned}\varphi_m|_{r=a} &= \varphi_s|_{r=a}, \\ \varphi_s|_{r=a+h} &= \varphi_o|_{r=a+h},\end{aligned}\tag{28}$$

$$\begin{aligned}\varepsilon_m(\partial\varphi_m/\partial n)|_{r=a} &= \varepsilon_s(\partial\varphi_s/\partial n)|_{r=a}, \\ \varepsilon_s(\partial\varphi_s/\partial n)|_{r=a+h} &= \varepsilon_o(\partial\varphi_o/\partial n)|_{r=a+h}.\end{aligned}\tag{29}$$

Будем считать, что резонанс в рассматриваемой системе имеет место для дипольной моды ( $l = 1$ ). Тогда из написанных выше соотношений, получим:

$$A = \frac{\varepsilon_m + 2\varepsilon_s}{3\varepsilon_s},\tag{30}$$

$$B = \frac{a^3(\varepsilon_s - \varepsilon_m)}{3\varepsilon_s},\tag{31}$$

$$C = \frac{\varepsilon_m + 2\varepsilon_s}{3\varepsilon_s}(a+h)^3 + \frac{a^3(\varepsilon_s - \varepsilon_m)}{3\varepsilon_s},\tag{32}$$

$$\frac{(\varepsilon_m + 2\varepsilon_s)(\varepsilon_s + 2\varepsilon_o)}{(\varepsilon_s - \varepsilon_m)(\varepsilon_s - \varepsilon_o)} = 2 \left(1 + \frac{h}{a}\right)^{-3}.\tag{33}$$

Последнее уравнение представляет собой условие, необходимое для существования дипольной моды. Существование моды по сути и означает возможность генерации в системе.

Отметим, что соотношение (33) комплексное. Зная дисперсию диэлектрических проницаемостей материалов, используемых в спазере, и используя соотношение (26), мы можем определить из него пороговую частоту генерации  $\omega_{th}$  и необходимую равновесную населенность  $N_{s,th}$  (необходимую интенсивность накачки). В пределе большой добротности (мнимые части диэлектрических проницаемостей много меньше действительных) действительная часть уравнения определяет условие резонанса, а мнимая ответственна за баланс энергий.

## 4.2. Вырождение моды

Стоит отметить, что изучаемая дипольная мода ( $l = 1$ ) трехкратно вырождена ( $m = -1, 0, 1$ ). Это вырождение не приводит к существенным эффектам, пока оно не снято. Оно приводит лишь к тому, что в системе возможны три различных направления "оси моды". Ситуация полностью аналогична р-состоянию атома водорода (волновые функции переводятся друг в друга вращением, подобно тому, как в нашем случае можно переводить вращением друг в друга "оси моды"). Однако, технология изготовления золотых наночастиц сложна и пока еще далека от совершенства: неидеальная сферичность шариков снимает вырождение. В дальнейшем мы считаем металлическую гранулу одномодовым резонатором, оставляя вопрос вырождения моды за рамками исследования.

## 5. Надпороговый режим

В случае работы спазера в надпороговом режиме поправка к диэлектрической проницаемости оболочки  $\hat{\varepsilon}_s^a$ , определяемая формулой (24), становится нелинейной по полю плазмонных колебаний. Чтобы определить структуру поля, необходимо решить уравнения Максвелла, которые в квазистатическом приближении сводятся к

$$\text{div}(\hat{\varepsilon}(\mathbf{r}) \text{grad } \Phi) = 0.\tag{34}$$

Данный раздел посвящен анализу этой ситуации в предположении, что добротность устройства  $Q$  много больше единицы [4]. Это предположение означает, что и поправка  $\hat{\varepsilon}_s^a$ , и мнимая часть диэлектрической проницаемости металла  $\varepsilon_m''$  относительно малы как  $1/Q$ .

## 5.1. Базовые определения

Введем в рассмотрение частоту  $\omega_{sp}$  и структуру моды поверхностного плазмона. По определению положим  $\omega_{sp}$ , удовлетворяющей уравнению (33) в отсутствие накачки и омических потерь:  $\hat{\varepsilon}_s^a = 0$ ,  $\varepsilon_m'' = 0$ . При этих условиях все диэлектрические проницаемости действительны, как и коэффициенты (30)–(32), определяющие пространственное устройство поля. Также введем оператор  $\hat{H}^0 = \text{div } \varepsilon^{(0)} \text{grad}$ , где:  $\varepsilon_m^{(0)} = \varepsilon_m'(\omega_{sp})$ ,  $\varepsilon_s^{(0)} = \varepsilon_s^0$ ,  $\varepsilon_o^{(0)} = \varepsilon_o$ .

Из уравнения (34) следует, что потенциал поля поверхностного плазмона удовлетворяет соотношению:  $\hat{H}^0|\Phi^0\rangle = 0$ . Введем еще одно обозначение:

$$\langle \Phi | \hat{H} | \Psi \rangle = \int dV \Phi^* \hat{H} \Psi. \quad (35)$$

Теперь легко показать, что оператор  $\hat{H}^0$  — действительный и самосопряженный. Эти его свойства позволяют нам использовать технику теории возмущений, разработанную в формализме квантовой механики.

## 5.2. Поправка к оператору $\hat{H}^0$

Рассмотрим надпороговую ситуацию:  $\hat{H} = \hat{H}^0 + \delta\hat{H}$ . Еще раз подчеркнем, что  $\hat{H}^0$  отвечает не порогу генерации, а случаю полного отсутствия накачки и потерь. Такой выбор мотивируется действительностью и самосопряженностью оператора  $\hat{H}^0$ . Для  $\delta\hat{H}$  имеем:

$$\delta\hat{H}|\Phi\rangle = \text{div}[\varepsilon_m(\omega) - \varepsilon_m'(\omega_{sp})]\text{grad}\Phi + \text{div}(4\pi\mathbf{P}_a), \quad (36)$$

где  $\mathbf{P}_a$  определяется прежним выражением (25), но без осциллирующего множителя. Он был учтен при выводе (34).

На основании (34) справедливо соотношение  $\langle \Phi | \hat{H} | \Phi \rangle = \langle \Phi | \hat{H}^0 | \Phi \rangle + \langle \Phi | \delta\hat{H} | \Phi \rangle = 0$ , которое приводит к уравнению:

$$\langle \Phi | \hat{H}^0 + \text{div}[\varepsilon_m(\omega) - \varepsilon_m'(\omega_{sp})] \text{grad} | \Phi \rangle - 4\pi \frac{nN_s(\Delta - i\Gamma)}{2} \int_{shell} dV \left\langle \frac{|\Omega|^2}{|\Gamma_\Delta|^2 + \tau\Gamma|\Omega|^2} \right\rangle_{\mathbf{d}} = 0. \quad (37)$$

Заметим, что интеграл принимает действительные значения. Преобразуем его к виду:

$$\int_{shell} dV \left\langle \frac{|\Omega|^2}{|\Gamma_\Delta|^2 + \tau\Gamma|\Omega|^2} \right\rangle_{\mathbf{d}} = \frac{|E_c|^2 |d|^2}{|\Gamma_\Delta|^2} V_{shell} f(u), \quad (38)$$

$$f(u) = \frac{1}{V_{shell}} \int dV \left\langle \frac{|\hat{\Omega}|^2}{1 + u|\hat{\Omega}|^2} \right\rangle_{\mathbf{d}}, \quad (39)$$

где  $E_c$  — поле в центре наночастицы,  $u = \tau\Gamma|E_c|^2|d|^2/|\Gamma_\Delta|^2$ , а величина  $\hat{\Omega}$  — безразмерная частота Раби. Отметим, что  $f(u)$  зависит не только от параметра  $u$ , но и от

структуры моды. Выделяя мнимую и действительную части, уравнение (37) можно записать в виде:

$$f(u)V_{shell} \frac{2\pi n N_s |E_c|^2 |d|^2}{|\Gamma_\Delta|^2} = \frac{\varepsilon_m''(\omega)}{\Gamma} \int_{core} |E|^2 dV, \quad (40)$$

$$\int_{core} |E|^2 dV \left[ \varepsilon_m'(\omega) - \varepsilon_m'(\omega_{sp}) + \frac{\Delta}{\Gamma} \varepsilon_m''(\omega) \right] = \langle \Phi | \hat{H}^0 | \Phi \rangle. \quad (41)$$

Первое соотношение представляет из себя баланс энергий. Оно определяет установившуюся амплитуду поля. Второе определяет частоту генерации системы. Важно понимать, что эти соотношения точные, а также, что структура моды  $\Phi$  связана с частотой генерации  $\omega$ , для которой справедливо последнее соотношение.

### 5.3. Отступление о природе сдвига частоты генерации

В уравнении (41) полезно сделать некоторые преобразования. Подставляя в него явное выражение для  $\hat{H}^0$ , получим соотношение:

$$\varepsilon_m'(\omega) + \frac{\Delta}{\Gamma} \varepsilon_m''(\omega) = - \frac{\varepsilon_s^0 \int_{shell} |E|^2 dV + \varepsilon_o \int_{out} |E|^2 dV}{\int_{core} |E|^2 dV}. \quad (42)$$

Следовательно, изменение частоты генерации связано с изменением структуры моды плазмонного колебания.

### 5.4. Амплитуда поля

Будем решать уравнение (41) по теории возмущений. В первом порядке по  $1/Q$  имеем:  $\langle \Phi | \hat{H}^0 | \Phi \rangle = 0$ . Таким образом, получаем:

$$\varepsilon_m'(\omega_{th}^{(1)}) - \varepsilon_m'(\omega_{sp}) + \frac{\Delta_{th}^{(1)}}{\Gamma} \varepsilon_m''(\omega_{th}^{(1)}) = 0 \quad (43)$$

или

$$\Delta_{th}^{(1)} = \frac{\omega_{sp} - \omega_{ul}}{1 + \varepsilon_m''/(\Gamma \partial \varepsilon_m' / \partial \omega)}. \quad (44)$$

Это уравнение определяет частоту генерации  $\omega_{th}^{(1)}$ . Индекс "1" символизирует 1-й порядок теории возмущений. Обратим внимание, что в этом порядке точности частота генерации остается неизменной, поскольку можно пренебрегать изменением структуры моды. Кроме того, она лежит между частотой поверхностного плазмона и частотой резонансного перехода в активных атомах.

Соотношение (40) позволяет определить установившуюся амплитуду поля, его структура совпадает с  $\Phi^0$  (в первом порядке теории возмущений). Результаты представлены на рис. 5. Различные кривые соответствуют различным концентрациям активных атомов, и поэтому различным интенсивностям накачки в пороге генерации. Качественно результаты совпадают с экспериментальной работой [4].

Обратим внимание, что безразмерные интенсивности  $I = |E_c|^2 |d|^2 / 2\gamma \Gamma \hbar^2$  и  $I_p = |\Omega_p|^2 / 2\gamma \Gamma_p$ , отложенные по осям графика на рис. 5, не соответствуют экспериментально измеряемым интенсивностям излучаемого света и падающей накачивающей волны, но они пропорциональны им. В наших обозначениях отношение  $I/I_p$  имеет порядок  $(E_c/E_p)^2$ . Зависимость интенсивности излучения от мощности накачки была

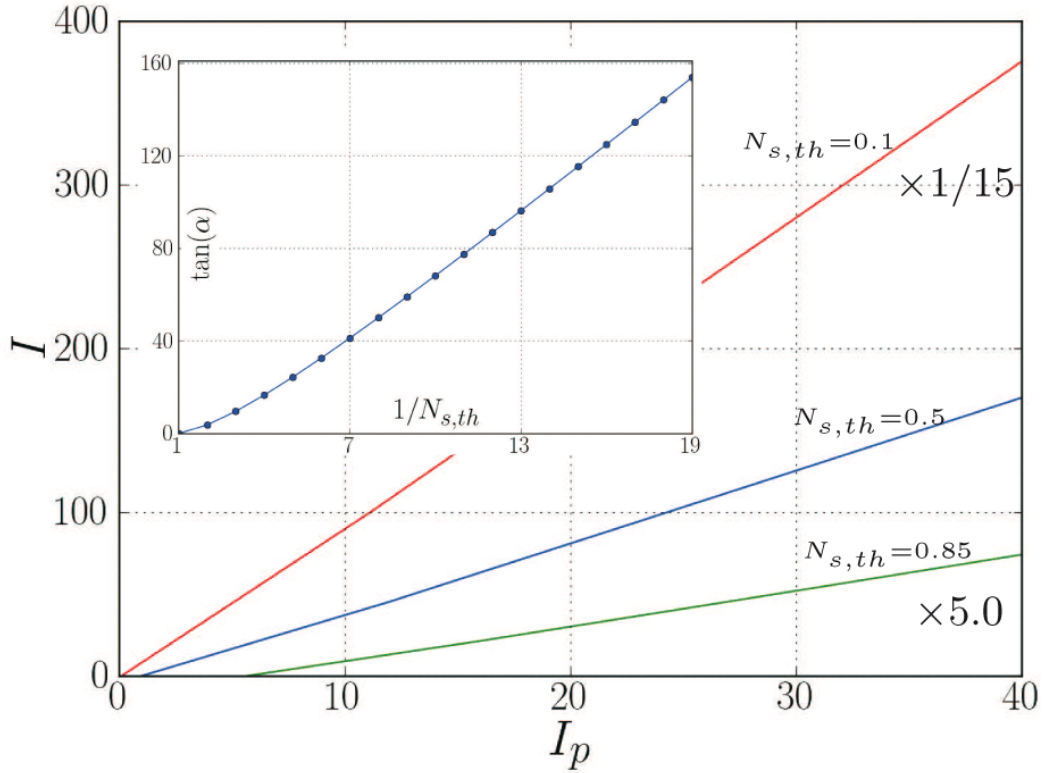


Рис. 5. **Интенсивность излучения.** Основной график, зависимость безразмерной интенсивности вынужденного излучения ( $I = |E_c|^2 |\mathbf{d}|^2 / 2\gamma\Gamma\hbar^2$ ) от безразмерной интенсивности накачивающей волны ( $I_p = |\Omega_p|^2 / 2\gamma\Gamma_p$ ). Вставка, тангенс угла наклона основного графика в зависимости от обратной равновесной инверсной населенности в пороге генерации.

детально изучена в работе [3], и здесь мы лишь хотим продемонстрировать корректность предлагаемого подхода. Мы предпочли обезразмерить интенсивности именно таким образом, чтобы избежать использования численных параметров для величин  $\Gamma_p$ ,  $\mathbf{d}_p$ ,  $\mathbf{d}$ ,  $\gamma$ . В дальнейшем окажется, что главный результат нашей работы — сдвиг частоты генерации, не будет зависеть от этих параметров по отдельности, он зависит только от их комбинаций, таких как  $I$  и  $I_p$ . Все численные параметры, используемые для расчета, указаны в последнем параграфе данного раздела. Кроме того заметим, что как и было указано ранее, основной график на рис. 5 не содержит насыщения накачки.

Выбор параметра для оси абсцисс на врезке рис. 5 обусловлен решением уравнения (40) в случае предела нулевой размерности, когда лазирующая мода однородна в области, содержащей активные атомы, и их дипольные моменты сонаправлены с электрическим полем. В этом случае усреднения выполняются аналитически и можно получить результат  $I = (\Gamma^2 / |\Gamma_\Delta|^2) (1/N_{s,th} - 1) (I_p - I_{p,th})$ .

Отметим, что на языке аналогий с квантовой механикой то, что сейчас было проделано, соответствует поправкам первого порядка к энергетическим уровням. Посмотрим теперь, какие эффекты появляются во втором порядке теории возмущений. Для этого нужно учитывать поправки первого порядка к волновым функциям.

## 5.5. Сдвиг частоты генерации

Рассмотрим второй порядок по  $1/Q$ . В этом порядке  $\langle \Phi | \hat{H}^0 | \Phi \rangle = \langle \delta\Phi | \hat{H}^0 | \delta\Phi \rangle$ . Тогда из соотношения (41) следует:

$$V_{core} |E_c^0|^2 \left( \frac{\partial \varepsilon'_m}{\partial \omega} + \frac{\varepsilon''_m}{\Gamma} + \frac{\Delta_{th}}{\Gamma} \frac{\partial \varepsilon''_m}{\partial \omega} \right)_{\omega=\omega_{th}^{(1)}} \delta\Delta = \langle \delta\Phi | \hat{H}^0 | \delta\Phi \rangle. \quad (45)$$

Отметим, что в пороге генерации  $\delta\Delta \neq 0$ , поскольку раньше мы нашли её с точностью  $O(1/Q)$ .

Теперь найдем  $\delta\Phi$  в главном порядке по возмущению. Для этого будем решать уравнение:

$$(\hat{H}^0 + \delta\hat{H})|\Phi\rangle = 0. \quad (46)$$

Нужная точность  $\delta\hat{H} = O(1/Q)$ . Тогда структуру моды в нелинейном механизме поляризации активной среды можно брать как у  $\Phi^0$ , поскольку сама поляризация уже содержит малость  $O(1/Q)$ . Иными словами,

$$\mathbf{P}_a = \frac{nN_s(\Delta - i\Gamma)}{2} \left\langle \frac{d_i \mathbf{d}^*}{|\Gamma_\Delta|^2 + \tau\Gamma|\Omega_0|^2} \right\rangle_d E_i. \quad (47)$$

В итоге  $\delta\hat{H}$  имеет вид:

$$\delta\hat{H}^m = \text{div } \delta\varepsilon_m \text{ grad}, \quad (48)$$

$$\delta\hat{H}^a|\Phi\rangle = 4\pi\mathbf{P}_a, \quad (49)$$

где  $\delta\varepsilon_m = (\partial\varepsilon'_m/\partial\omega)(\omega - \omega_{sp}) + i\varepsilon''_m(\omega)$ . С нужной степенью точности в последнем выражении можно положить  $\omega = \omega_{th}^{(1)}$ . Вся сложность состоит в том, что  $\hat{\varepsilon}_s^a = \hat{\varepsilon}_s^a(r, \theta)$ , где  $\delta\hat{H}^a|\Phi^0\rangle = \hat{\varepsilon}_s^a E_0$ . Угол  $\theta$  выбран так, что  $\Phi^0 = \Phi_1^0(r)Y_{1,0}$ .

Представим  $\Phi = \Phi^0 + \delta\Phi$ ,  $\delta\Phi = \sum_{l=1}^{\infty} \delta\Phi_l(r)Y_{l,0}$ . В сумме отсутствует гармоника  $l = 0$  в силу того, что мы предполагаем электронейтральность рассматриваемой системы. Мы также не суммируем по гармоникам с  $m \neq 0$ , так как предполагаем, что исходная мода  $l = 1$ ,  $m = 0$ , и в силу своей аксиальной симметрии, она способна возбуждать лишь другие аксиально симметричные моды. Тогда:

$$\hat{H}^0|\delta\Phi\rangle = -\delta\hat{H}|\Phi^0\rangle. \quad (50)$$

Спроектируем полученное соотношение на  $Y_{l,0}$ , подразумевая интегрирование только по углам:

$$\langle Y_{l,0} | \hat{H}^0 | \delta\Phi \rangle = -\langle Y_{l,0} | \delta\hat{H} | \Phi^0 \rangle. \quad (51)$$

Расписывая дивергенцию и градиент в сферических координатах, находим:

$$\langle Y_{l,0} | \hat{H}^0 | \delta\Phi \rangle = \left[ \frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left( \varepsilon^{(0)} r^2 \frac{\partial}{\partial r} \right) - \frac{l(l+1)}{r^2} \varepsilon^{(0)} \right] \delta\Phi_l = \hat{H}_0^l(r) \delta\Phi_l, \quad (52)$$

$$\langle Y_{l,0} | \delta\hat{H} | \Phi^0 \rangle = \left[ \delta_{l1} \frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left( \delta\varepsilon_m r^2 \frac{\partial}{\partial r} \right) - \frac{2\delta\varepsilon_m \delta_{l1}}{r^2} + \delta\hat{H}_l^a \right] \Phi_1^0(r) = \hat{H}_l^a(r) \Phi_1^0(r), \quad (53)$$

$$\delta\hat{H}_l^a = \frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \langle Y_{l,0} | \hat{\varepsilon}_s^a | Y_{1,0} \rangle r^2 \frac{\partial}{\partial r} + \frac{1}{r^2} \langle Y_{l,0} | \nabla^{\perp\alpha} \hat{\varepsilon}_s^a \nabla_{\alpha}^{\perp} | Y_{1,0} \rangle. \quad (54)$$

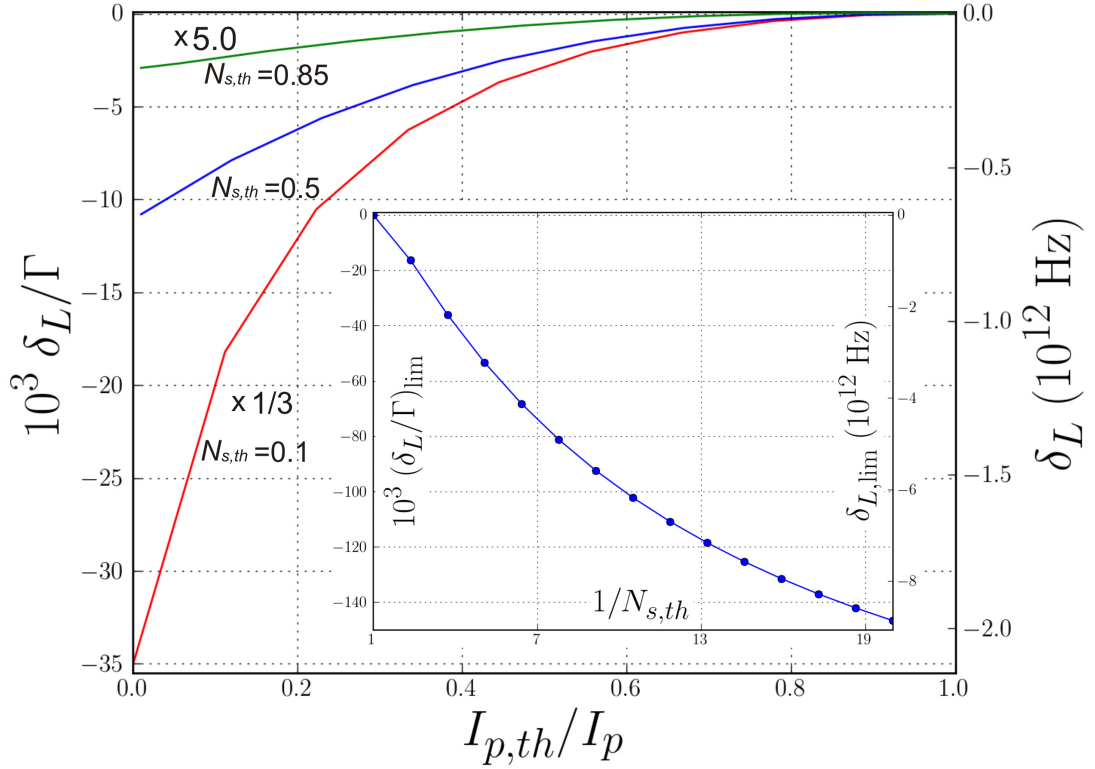


Рис. 6. **Сдвиг частоты генерации.** Основной график, зависимость сдвига частоты генерации от обратной интенсивности накачки, нормированной на пороговое значение. Вставка, асимптотическое значение сдвига частоты (предел сильного превышения порога), в зависимости от обратной равновесной населенности в пороге генерации.

Оператор  $\hat{H}_0^l(r)$  в  $l > 1$  секторе невырожден. Поэтому существует функция Грина:  $\hat{H}_0^l(r)G_l(r, r') = \delta(r - r')$ . В случае  $l = 1$  к частному решению уравнения (51) можно добавить произвольное число  $\Phi^0$ . Однако, эта неоднозначность не вносит никакой неопределенности, поскольку  $\hat{H}^0|\Phi^0\rangle = 0$ , и вклад этих слагаемых в величину  $\langle \delta\Phi | \hat{H}^0 | \delta\Phi \rangle$  нулевой. Символически для этой ситуации введем аналог функции Грина, который обозначим  $G_1(r, r')$ . Теперь мы можем вычислить поправку к полю:

$$\delta\Phi_l(r) = - \int d^3r' G_l(r, r') \hat{H}_l^a(r') \Phi_1^0(r'). \quad (55)$$

И поэтому:

$$\begin{aligned} \langle \delta\Phi | \hat{H}_0 | \delta\Phi \rangle &= \sum_{l=1}^{\infty} \int d^3r \langle \delta\Phi_l(r) | \hat{H}_0^l | \delta\Phi_l(r) \rangle = \\ &= \sum_{l=1}^{\infty} \int d^3r \int d^3r' G_l(r, r') \hat{H}_l^a(r') \Phi_1^0(r') \hat{H}_l^a(r) \Phi_1^0(r). \end{aligned} \quad (56)$$

Сдвиг частоты теперь можно найти воспользовавшись (45). Результаты представлены на рис. 6. Отметим, что как мы уже говорили ранее, сдвиг частоты в пороге генерации отличен от нуля. Этот сдвиг получается одинаковым для всех кривых, он связан с более точным определением пороговой частоты генерации (второй порядок теории возмущений). Для наглядности мы вычли это изменение всюду по оси ординат, тем самым оставив на графике только часть, механизм которой связан с изменением пространственной структуры моды.



Изменение структуры моды происходит благодаря неоднородному изменению диэлектрической проницаемости оболочки. Такое изменение, в свою очередь, обусловлено насыщением накачки. Средний по пространству уровень насыщения накачки определяется отклонением инверсной заселенности  $N$  от ненасыщенного значения  $N_s$ . Теоретическое рассмотрение в случае предела нулевой размерности приводит к заключению, что баланс энергий соблюдается в случае выполнения условия  $N = N_{s,th}$  (хорошо известное явление в лазерной физике, называемое *inversion clamping* или *inversion pinning*). Это соотношение определяет выбор параметра, отложенного по оси абсцисс на врезке рис. 6.

Экспериментальные данные работы [4] подтверждают, что явление сдвига частоты имеет место, однако этот вопрос не был изучен в должной мере. До выхода нашей статьи [5] оставался удивительным тот факт, что частота генерации спазера находилась не между частотой поверхностного плазмона и частотой резонансного перехода в активных атомах, как того требует формула (44), а за пределами этого диапазона. Мы предлагаем следующее объяснение этого обстоятельства: в пороге генерации частота спазера находится между двух указанных частот, затем, с увеличением интенсивности накачки, происходит сдвиг частоты за счет изменения структуры лазирующей моды. Величина этого сдвига может оказаться настолько большой, что частота генерации сможет выйти за указанный интервал частот. Результаты численного счета показывают, что такой сценарий реализуется для выбранных численных параметров.

Отметим, что развитие событий по такому сценарию оказалось возможным благодаря невысокой добротности спазера  $Q \sim 15$ . Исследуемый эффект сдвига частоты появляется во втором порядке теории возмущений по параметру  $1/Q$ , и подобный сценарий невозможен для обычных лазеров, обладающих высокой добротностью  $Q \sim 10^5$ .

Разработанный метод позволяет определять частоту генерации спазера в любой точке выше порога. Амплитуда сдвига частоты может служить критерием, характеризующим изменение пространственной структуры поля спазера.

## 5.6. Численные параметры модели

Все численные результаты были получены для золотой наночастицы радиусом  $a = 7nm$  и толщины шелла  $h = 15nm$ . Диэлектрическая проницаемость оболочки в отсутствии оптически активных атомов  $\epsilon_s^0 = 2.586$ , диэлектрическая проницаемость внешнего пространства  $\epsilon_o = 1.77$  согласно экспериментальной работе [4]. Дисперсия диэлектрической проницаемости для золота взята из работы [8]. Константы  $\hbar\Gamma = 1eV$  и  $\Delta_{th}/\Gamma = -0.1$ .

## 6. Ширина спектральной линии

В этом разделе мы рассмотрим модель, которая позволяет определять ширину спектральной линии спазера. Источником шумов в нашей модели будут выступать флуктуации числа плазмонов за счет спонтанных переходов активных атомов в невозбужденное состояние. Рассмотрение носит качественный характер и опирается на [7]. Отметим, что это единственный раздел данной работы, где плазмонные колебания рассматриваются с квантовой точки зрения.

## 6.1. Модель фазовой диффузии

Рассмотрим произвольную точку в пространстве за пределами наночастицы. Амплитуда поля в ней  $E(t) = \sqrt{I_{ss}}e^{i\varphi(t)}$ . Будем считать, что  $\varphi(t)$  флуктуирует за счет актов спонтанного излучения активных атомов, см. рис. 7. Кроме того предположим, что малое изменение фазы из-за одного акта спонтанного испускания происходит за время, намного меньшее времени, в течение которого происходит общая эволюция поля. Флуктуациями интенсивности поля  $I_{ss}$  пренебрежем, предполагая, что устройство находится далеко за порогом генерации. Флуктуации фазы будем считать диффузионными. Пусть  $P(\varphi, t)$  функция распределения фазы. Тогда из уравнения диффузии

$$\frac{\partial}{\partial t}P = D\frac{\partial^2}{\partial\varphi^2}P \quad (57)$$

находим, что

$$P(\varphi, t|\varphi_0) = \frac{1}{\sqrt{4\pi Dt}}\exp\left[-\frac{(\varphi - \varphi_0)^2}{4Dt}\right]. \quad (58)$$

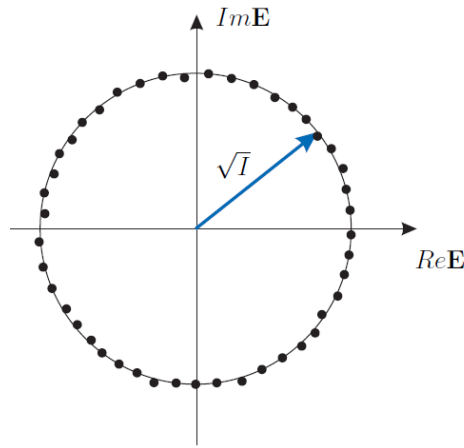


Рис. 7. Модель фазовой диффузии. Фаза участвует в двух движениях: равномерном вращении с частотой генерации  $\omega_L$  и случайном блуждании по окружности.

Для вычисления спектра необходимо взять преобразование Фурье от корреляционной функции  $\langle E^*(t+\tau)E(t) \rangle$  (Wiener-Khinchin theorem). Фаза поля  $E(t)$ :  $-\omega_L t + \varphi_0$ , тогда фаза поля  $E(t+\tau)$ :  $-\omega_L(t+\tau) + \varphi(\tau)$ . По  $\varphi(\tau)$  усредним в соответствии с функцией распределения

$$\langle E^*(t+\tau)E(t) \rangle = I_{ss}e^{i\omega_L\tau} \int d\varphi P(\varphi, \tau|\varphi_0)e^{-i(\varphi-\varphi_0)} = I_{ss}e^{i\omega_L\tau}e^{-D\tau}. \quad (59)$$

Выполняя преобразование Фурье, находим спектр

$$S(\omega) = 2\text{Re} \int_0^\infty d\tau e^{-i\omega\tau} \langle E^*(t+\tau)E(t) \rangle = \frac{2I_{ss}D}{(\omega - \omega_L)^2 + D^2}. \quad (60)$$

Таким образом, ширина спектральной линии определяется коэффициентом диффузии.

## 6.2. Коэффициент диффузии

Для вычисления коэффициента диффузии потребуется рассматривать электромагнитное поле квантовым образом. Введем матрицу плотности  $\rho$  для плазмонного поля в системе. Операторы  $a^+$ ,  $a$  рождают и уничтожают плазмон исследуемой моды соответственно. Интенсивность поля  $I$  пропорциональна величине  $\langle a^+a \rangle$  — числу плазмонов  $n$  в системе. Для нее мы предполагаем выполненным уравнение

$$\frac{dI}{dt} = (G - \kappa)I, \quad (61)$$

где слагаемое с  $G$  отвечает накачке (за счет активной среды), а с  $\kappa$  — затуханию (за счет омических потерь). Как было выяснено ранее в выражении (25), в нашей системе накачка нелинейно зависит от интенсивности поля плазмонных колебаний, т.е.  $G = G(n)$ . Для простоты можно считать, что эта зависимость имеет вид

$$G(a^+a) = \frac{G_0}{1 + B(a^+a)}. \quad (62)$$

Пространственное распределение активных атомов меняет коэффициенты  $G_0$  и  $B$ . За их значения мы не боремся, предполагая, что они будут выбираться из тех соображений, чтобы теория численно сошлась с экспериментом. Другими словами, мы рассматриваем предел нулевой размерности, см. обсуждение результатов раздела 5.4.

*Master equation* для нашей системы (из него следует (61)) можно записать в виде

$$\dot{\rho} = \frac{G}{2}(2a^+\rho a - aa^+\rho - \rho aa^+) - \frac{\kappa}{2}(a^+a\rho + \rho a^+a - 2a\rho a^+). \quad (63)$$

В этом разделе мы не рассматриваем в явном виде активную среду. Мы считаем, что благодаря ей происходит передача энергии к плазмонным колебаниям, что описывается членом с  $G$ . Второе слагаемое с  $\kappa$  описывает омические потери. В  $P$ -представлении (*Glauber-Sudarshan P-representation*, см. приложение) это уравнение приобретает вид [7]:

$$\frac{\partial}{\partial t}P(\alpha, \alpha^*) = \frac{1}{2} \left\{ \frac{\partial}{\partial \alpha}(k - G)\alpha + \frac{\partial}{\partial \alpha^*}(k - G)\alpha^* \right\} P + \frac{G}{4} \frac{\partial^2}{\partial \alpha \partial \alpha^*} P. \quad (64)$$

В качестве аппроксимации можно принять  $G = G_0/(1 + B|\alpha|^2)$ . Так как нас интересует фазовая диффузия, то перейдем к полярным координатам  $\alpha = re^{i\varphi}$

$$\frac{\partial}{\partial t}P(r, \varphi) = \frac{1}{2r} \frac{\partial}{\partial r} r^2 (k - G(r^2)) P + \frac{G(r^2)}{4r} \left( \frac{\partial}{\partial r} r \frac{\partial}{\partial r} + \frac{1}{r} \frac{\partial^2}{\partial \varphi^2} \right) P. \quad (65)$$

Откуда для коэффициента диффузии получаем

$$D = \frac{G(r^2)}{4r^2} = \frac{G(n)}{4n}. \quad (66)$$

## 6.3. Определение коэффициентов $G_0$ и $B$

Теперь выясним, чему равны коэффициенты  $G_0$  и  $B$  в выражении для  $G$ . Для этого обратимся к уравнению (61) и вычислим левую часть при полуклассическом подходе к рассмотрению электромагнитного поля. Из уравнений Максвелла следует соотношение

$$\text{rot rot } \mathbf{E} + \frac{\varepsilon^0}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathbf{E} = -\frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{P}}{\partial t^2}. \quad (67)$$

Разложение для поля в одномодовом приближении имеет вид

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = E_1 \{ \mathbf{e}(\mathbf{r})a(t) + \mathbf{e}^*(\mathbf{r})a^+(t) \}, \quad (68)$$

где  $E_1 \propto \sqrt{\hbar\omega_L/V}$  — одноплазменная амплитуда поля, а  $\mathbf{e}(\mathbf{r})$  — описывает пространственную структуру моды:

$$\text{rot rot } \mathbf{e}(\mathbf{r}) - \varepsilon^{(0)} \frac{\omega_{sp}^2}{c^2} \mathbf{e}(\mathbf{r}) = 0. \quad (69)$$

За численные коэффициенты мы не боремся и в дальнейшем их опускаем. Как было отмечено выше, они могут быть выбраны из соображений сходимости теории с экспериментом.

Амплитуда поля  $E(t) = E_1 a(t)$ . Найдем уравнение, описывающее  $\dot{E}$ , для чего спроецируем (67) на  $\mathbf{e}(\mathbf{r})$ . Учтем, что собственная функция нормированна условием

$$\int dV \mathbf{e}(\mathbf{r}) = V. \quad (70)$$

Также будем считать, что амплитуда поля меняется со временем очень медленно, а само поле, равно как и поляризация  $\propto e^{-i\omega_L t}$ . В итоге получим:

$$\dot{E} = -i(\omega_{sp} - \omega_L)E + i \frac{2\pi\omega_L}{\varepsilon^{(0)}} \int \frac{dV}{V} \mathbf{P} \mathbf{e}(\mathbf{r}). \quad (71)$$

Из последнего слагаемого отдельно выделим член, описывающий интегрирование по объему металла. Это ни что иное, как омические потери

$$\dot{E} = -i(\omega_{sp} - \omega_L)E + i \frac{2\pi\omega_L}{\varepsilon_s^0} \int_{shell} \frac{dV}{V} \mathbf{P} \mathbf{e}(\mathbf{r}) - \frac{k}{2} E. \quad (72)$$

Теперь вычислим  $\frac{dI}{dt} = 2 \text{Re} \left( E^* \frac{dE}{dt} \right)$ . Имеем:

$$\frac{dI}{dt} = -kI - \frac{4\pi\omega_L}{\varepsilon_s^0} \int_{shell} \frac{dV}{V} \text{Im} \frac{\hat{\varepsilon}_s^a}{4\pi} \mathbf{e}(\mathbf{r}) I. \quad (73)$$

С точностью до численного множителя находим:  $G = -\omega_L (\text{Im} \hat{\varepsilon}_s^a / \varepsilon_s^0)$ . Используя для поляризации активной среды выражение (25), а для  $G$  выражение (62), находим:

$$G_0 \propto \frac{N_s n |d|^2}{\varepsilon_s^0 |\Gamma_\Delta|^2} \Gamma \omega_L, \quad B \propto \frac{\tau \Gamma |d|^2}{|\Gamma_\Delta|^2} E_1^2. \quad (74)$$

Поведение коэффициентов  $G_0$  и  $B$  при сильном превышении порога можно определить из уравнений (22)—(23). Оказывается, что коэффициент диффузии

$$D = \frac{G(n)}{4n} \propto 1/I. \quad (75)$$

Таким образом, ширина спектра обратно пропорциональна интенсивности излучения. Это утверждение находится в качественном согласии с [4]. Однако стоит заметить, что в работе [4] исследовалась не одна наночастица, а большое их количество. Вполне возможно, что там вступают в игру другие механизмы, определяющие ширину спектра. Например, это могло быть неоднородное уширение, вызванное дисперсией размеров используемых наночастиц.

## Заключение

В этом году исполняется 10 лет с момента появления идеи принципов работы спазера [2] и 4 года с момента его первой экспериментальной реализации [4]. За это время было опубликовано много теоретических работ, предлагающих различные модели для описания поведения данного устройства, например [3] или [9].

Опираясь на эти и многие другие статьи, мы разработали новый подход к проблеме поведения спазера в надпороговом режиме. Принципиальным отличием является попытка учета деформации лазирующей моды за счет неоднородного насыщения активной среды. Оказалось, что указанная деформация приводит к эффекту сдвига частоты генерации спазера, что и является главным объектом исследования данной работы.

С технической точки зрения в работе исследовались уравнения Максвелла, записанные в рамках квазистатического приближения. Сложность данной задачи заключается в нелинейном поведении поляризации активной среды относительно электромагнитного поля плазмонных колебаний. Для решения данной задачи была разработана теория возмущений по малому параметру  $1/Q$ .

В отличие от лазеров, спазеры обладают невысокой добротностью  $Q \sim 15$ , и поэтому эффект сдвига частоты генерации может наблюдаться экспериментально [4], [10]. Несмотря на малость величины этого сдвига, в пределе сильного превышения порога генерации она будет больше ширины спектральной линии, так как последняя убывает обратно пропорционально интенсивности нанолазера, см. выражение (75), а сдвиг частоты стремится к постоянному значению, см. рис. 6.

Кроме этого, в данной работе была разработана 4-х уровневая модель для описания активных атомов. Такое рассмотрение позволяет в явном виде связать интенсивность излучения спазера с интенсивностью накачивающей волны, см. рис. 5. Указанная зависимость представляет немаловажный практический интерес, поскольку интенсивность излучения является одной из важнейших характеристик любого активного устройства. Результат находится в качественном согласии с экспериментальной работой [4].

Результаты данной работы были опубликованы в одном из ведущих научных журналов [5]. Мы надеемся, что со временем наша работа внесет свой вклад в понимание механизмов, определяющих работу спазера, и привлечет к себе внимание коллег.

## Список литературы

1. Mark I. Stockman. Nanoplasmonics: past, present, and glimpse into future. *Optics Express*, 19(22):22029, October 2011.
2. David J. Bergman and Mark I. Stockman. Surface plasmon amplification by stimulated emission of radiation: Quantum generation of coherent surface plasmons in nanosystems. *Physical Review Letters*, 90:027402, 2003.
3. M.I. Stockman. The spaser as a nanoscale quantum generator and ultrafast amplifier. *Journal of Optics*, 12:024004, 2010.
4. M. A. Noginov, G. Zhu, A. M. Belgrave, R. Bakker, V. M. Shalaev, E. E. Narimanov, S. Stout, E. Herz, T. Suteewong, and U. Wiesner. *Nature*, 460:1110, 2009.
5. V. M. Parfenyev and S. S. Vergeles. Intensity-dependent frequency shift in surface plasmon amplification by stimulated emission of radiation. *Phys. Rev. A*, 86:043824, Oct 2012.
6. L. Allen and J.H. Eberly. *Optical resonance and two-level atoms*. Wiley, 1976.
7. M.O. Scully and M.Sh. Zubairy. *Quantum Optics*. Cambridge University Press, 1997.
8. P. B. Johnson and R. W. Christy. Optical constants of the noble metals. *Physical Review B*, 6:4370, 1972.
9. M.I. Stockman. Spasers explained. *Nature Photonics*, 2:327, 2008.
10. R.F. Oulton, V.J. Sorger, Th. Zentgraf, R.-M. Ma, Ch. Gladden, L. Dai, G. Bartal, and X. Zhang. Plasmon lasers at deep subwavelength scale. *Nature*, 461:629, 2009.

## Приложение: P-представление

Введем в рассмотрение характеристическую функцию

$$\chi_N(z, z^*) \equiv \text{tr} \left( \rho e^{iz^* a^+} e^{iza} \right), \quad (76)$$

которая определяет все *нормально-упорядоченные операторные средние* посредством

$$\langle a^{+p} a^q \rangle = \text{tr}(\rho a^{+p} a^q) = \frac{\partial^{p+q}}{\partial (iz^*)^p \partial (iz)^q} \chi_N \Big|_{z=z^*=0}. \quad (77)$$

Определение распределения для вычисления нормально-упорядоченных средних естественным образом вытекает из этого результата. Если мы определим  $P(\alpha, \alpha^*)$  как Фурье преобразование от  $\chi_N(z, z^*)$ :

$$\begin{aligned} P(\alpha, \alpha^*) &\equiv \frac{1}{\pi^2} \int d^2 z \chi_N(z, z^*) e^{-iz^* \alpha^*} e^{-iz \alpha} \equiv \\ &\equiv \frac{1}{\pi^2} \int_{-\infty}^{\infty} d\mu \int_{-\infty}^{\infty} d\nu \chi_N(\mu + i\nu, \mu - i\nu) e^{-2i(\mu x - \nu y)}, \end{aligned} \quad (78)$$

с обратным соотношением

$$\begin{aligned} \chi_N(z, z^*) &= \int d^2 \alpha P(\alpha, \alpha^*) e^{iz^* \alpha^*} e^{iz \alpha} = \\ &= \int_{-\infty}^{\infty} dx \int_{-\infty}^{\infty} dy P(x + iy, x - iy) e^{2i(\mu x - \nu y)}, \end{aligned} \quad (79)$$

тогда из уравнений (77) и (79)

$$\langle a^{+p} a^q \rangle = \int d^2 \alpha P(\alpha, \alpha^*) \alpha^{*p} \alpha^q = \overline{(\alpha^{*p} \alpha^q)}_P. \quad (80)$$

Функция  $P(\alpha, \alpha^*)$  позволяет вычислять нормально-упорядоченные операторные средние как в статистической механике. Она играет роль функции распределения.