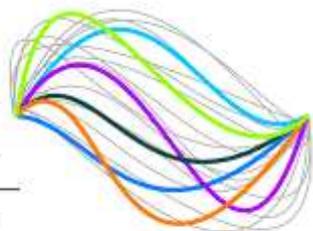


UBFC

UNIVERSITÉ
BOURGOGNE FRANCHE-COMTÉ



**Thèse de doctorat de l'établissement Université Bourgogne Franche-Comté préparée
au Laboratoire Interdisciplinaire Carnot de Bourgogne**

**École doctorale n° 553
École Doctorale Carnot-Pasteur**

Doctorat de Physique

Par

Hugo VARGUET

Nanoplasmonique quantique: de l'atome habillé à la superradiance

Thèse présentée et soutenue à Dijon, le 22 Novembre 2019 devant le jury composé de :

M. Jean-Jacques Greffet,	Professeur (Institut d'optique Paris-Saclay)	Rapporteur
M. Arne Keller,	Professeur (Université Paris Sud)	Rapporteur
M. Bruno Bellomo,	Maître de Conférence (Université Bourgogne Franche-Comté)	Examineur
M. Christophe Couteau,	Maître de Conférence (Université de Technologie de Troyes)	Examineur
M. Jose-Luis Jaramillo,	Professeur (Université Bourgogne Franche-Comté)	Examineur
M. Gérard Colas des Francs,	Professeur (Université Bourgogne Franche-Comté)	Directeur de thèse
M. Stéphane Guérin,	Professeur (Université Bourgogne Franche-Comté)	Co-directeur de thèse

Laboratoire Interdisciplinaire Carnot de Bourgogne,
UMR 6303 CNRS-Université de Bourgogne Franche-Comté,
9 Av. Alain Savary, BP 47870,
F-21078 DIJON Cedex, FRANCE



Remerciements

Tout d'abord, je souhaite remercier mes directeurs de thèse, G. Colas des Francs et S. Guérin pour m'avoir accordé de leurs précieux temps et de leurs expériences tout au long de ces quatre années. Les nombreuses discussions que nous avons eues ont été très enrichissantes et m'ont permis d'avancer dans mes travaux de recherche.

Je remercie B. Rousseau, D. Dzutjan et A. Castellini pour leurs travaux remarquables sur lesquels je me suis reposé tout au long de mes recherches. Sans votre aide, il m'aurait été plus difficile d'appréhender mon sujet de recherche.

Je remercie V. Dorier et plus particulièrement H. Jauslin pour les questions, remarques et conseils pertinents. Cela m'a permis de mieux comprendre certains aspects théoriques.

Je remercie sincèrement A. Bouhelier, M. Buret, L. Markey et J.M Arocas d'avoir été patients et disponibles pour me former sur les différents dispositifs expérimentaux et les procédés de nanofabrication (microscope optique, banc optique, salle blanche, dépôt de couche mince).

Je remercie F. Chaussard, K. Hammani, B. Cluzel, G. Guillon et P. Honvault. Enseigner à vos côtés a été agréable et instructif.

Je remercie P. Froidevaux, A. Fusaro, E. Prost et K. Hamraoui pour votre sympathie et toutes les discussions que nous avons pu avoir lors des moments de pause.

Je remercie ma famille et plus particulièrement mes parents, Hervé et Nathalie, ma sœur Élodie et ma grand-mère, Édith pour votre attention et votre soutien.

Pour finir, je te remercie pour tout Aurore. Tu as su me motiver quand cela était nécessaire. Tous ces bons moments passés ensemble m'ont beaucoup aidé à mener cette thèse jusqu'à son terme.



Table des matières

Introduction	7
1 Motivation et état de l'art	9
1.1 Interaction lumière-matière	9
1.2 Contrôle de nanosource	11
1.2.1 Cavités optiques	11
1.2.2 Structures plasmoniques	14
1.2.3 Plasmonique quantique	17
2 Modèles effectifs pour la plasmonique quantique	19
2.1 Quantification en milieu dispersif et absorbant	20
2.1.1 Équations de Maxwell et fluctuations quantiques	20
2.1.2 Base des harmoniques sphériques	22
2.1.3 Développement de Mie du tenseur de Green	23
2.2 Quantification des modes plasmoniques	24
2.2.1 Interaction quantique entre émetteurs et plasmons de surfaces localisés	24
2.2.2 Décomposition modale de l'interaction	25
2.2.3 Interdépendance entre émetteur et orthonormalisation de Löwdin	27
2.2.4 Élimination des états sombres	29
2.3 Modèle effectif discret	31
2.3.1 Émetteur unique	32
2.3.2 Plusieurs émetteurs	36
2.4 Équation maîtresse pour la plasmonique quantique	37
2.4.1 Pseudo-modes et Quasi-modes	37
2.4.2 Processus radiatif et profil de Fano	39
2.4.3 Processus non-radiatif	43
2.5 Conclusion	46
2.A Tenseur de Green pour une sphère métallique plongée dans un milieu diélectrique homogène	48
2.B Dérivation de l'équation maîtresse en régime de couplage fort	50
2.B.1 Équations de Langevin	50
2.B.2 Élimination de l'environnement	52
3 Superradiance plasmonique	55
3.1 Processus collectif d'émission de plusieurs émetteurs quantiques dans le vide	56
3.1.1 Système à deux émetteurs	56
3.1.2 Taux de photons émis	58
3.1.3 Modèle de Dicke	60
3.2 Modèle effectif pour la superradiance plasmonique	62
3.2.1 Régime de couplage faible	62
3.2.2 Émission collective de deux émetteurs	64
3.2.3 Superradiance plasmonique idéale	67
3.3 Exaltation de superradiance par couplage aux plasmons de surface localisés	70
3.3.1 Dynamique d'émission superradiante et rayonnement en champ lointain	70

3.3.2	Base de Dicke étendue	73
3.4	Conclusion	75
3.A	Calcul du taux de photons émis	76
3.B	Construction de l'équation maîtresse en régime de couplage faible	79
3.B.1	Élimination adiabatique	79
3.B.2	Équation maîtresse	81
4	États habillés en régime de couplage fort	85
4.1	Réponse spectrale en cavité	86
4.1.1	Modèle	86
4.1.2	Régime de couplage	88
4.2	Réponse spectrale du système hybride émetteur-nanoparticule	92
4.2.1	Profil spectral en champ proche et en champ lointain	92
4.2.2	Représentation des états habillés du système	95
4.2.3	Contribution modale en champ lointain	99
4.3	Couplage collectif fort	100
4.4	Conclusion	107
4.A	Densité spectrale et spectre d'émission d'un système hybride émetteurs-nanoparticule	108
4.A.1	Système	108
4.A.2	Densité spectrale	109
4.A.3	Spectre d'émission	111
	Conclusion générale et perspectives	113

Introduction

Les technologies quantiques sont au cœur de nombreuses applications telles que les ordinateurs (transistors), les communications haut-débit (laser) ou la géolocalisation (horloge atomique). Dans ce contexte, la réalisation de systèmes nanophotoniques pour des dispositifs intégrés est un défi important. La plasmonique quantique faisant l'objet de cette thèse peut-être une réponse à cet enjeu. Ce travail a pour objectif de décrire le couplage entre un ou plusieurs émetteurs quantiques et une nano-structure métallique. Ces structures font intervenir des plasmons de surface localisés qui résultent du couplage d'une onde électromagnétique avec les oscillations collectives des électrons de surface de la nano-structure métallique. Cet état hybride entre lumière et matière peut être confiné sur des dimensions très réduites repoussant ainsi les limites de la miniaturisation dans le domaine de la nano-photonique. De plus, les structures plasmoniques sont envisagées pour contrôler des objets quantiques individuels et leurs corrélations, ouvrant un immense champ d'applications liées à la communication et son traitement quantiques (réseau, cryptographie, ordinateur, ...).

Ce manuscrit est organisé de la manière suivante :

- Le chapitre 1 dresse un rapide état de l'art du contrôle de nano-sources optiques en distinguant le contrôle en cavité optique et le contrôle par couplage à une structure plasmonique. Les avancées expérimentales dans le domaine de la plasmonique quantique sont présentées, et motivent la construction d'un modèle théorique permettant une description quantique des plasmons de surfaces localisés.
- Le chapitre 2 détaille la construction d'un modèle effectif dédié à la plasmonique quantique faisant le lien avec l'électrodynamique quantique en cavité. La construction se fait en deux étapes : la construction d'un modèle continu basé sur la décomposition modale de la densité d'état locale puis la discrétisation menant à l'établissement de pseudo-modes plasmoniques discrets.
- Le chapitre 3 s'attache à décrire l'émission collective d'un ensemble d'émetteurs couplés aux plasmons de surface localisés d'une nanoparticule métallique en régime de couplage faible. Le modèle effectif sera utilisé pour décrire le phénomène de superradiance plasmonique et sa dynamique.
- Le chapitre 4 est dédié à l'étude d'un système hybride émetteurs+nano-particule en régime de couplage fort. Nous développerons un modèle de l'atome habillé et discuterons notamment de l'influence du nombre d'émetteurs sur la fréquence de Rabi qui caractérise les échanges d'énergies réversibles entre émetteurs et plasmons.

Durant ce travail de recherche, nous avons apporté notre contribution au sein de la communauté scientifique par le biais de la publication des articles suivants :

- *Dressed states of a quantum emitter strongly coupled to a metal nanoparticle*, H. Varguet, B. Rousseaux, D. Dzsotjan, H.R. Jauslin, S. Guérin and G. Colas des Francs, *Optics letters*, 41(19), 4480 (2016)
- *From localized to delocalized plasmonic modes, first observation of superradiant scattering in disordered semi-continuous metal films*, A. Berthelot, G. Colas des Francs, H. Varguet J. Margueritat, R. Mascarit, J.M. Benoit and J. Laverdant, *Nanotechnology*, 30(1), 015706 (2018)
- *Non-hermitian Hamiltonian description for quantum plasmonics : from dissipative dressed atom picture to Fano states*, H. Varguet, B. Rousseaux, D. Dzsotjan, H.R. Jauslin, S. Guérin and G. Colas des Francs, *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics*, 52(5), 055404 (2019)
- *Cooperative emission in quantum plasmonic superradiance*, H. Varguet, S. Guérin, H.R. Jauslin, and G. Colas des Francs, *Physical Review B*, 100(4), 041115 (2019).

Chapitre 1

Motivation et état de l'art

Sommaire

1.1	Interaction lumière-matière	9
1.2	Contrôle de nanosource	11
1.2.1	Cavités optiques	11
1.2.2	Structures plasmoniques	14
1.2.3	Plasmonique quantique	17

1.1 Interaction lumière-matière

Un enjeu majeur des nanosciences et des nanotechnologies est de réduire la dimension des systèmes tout en augmentant les performances des dispositifs actuels. Cette miniaturisation nécessite de mieux comprendre les phénomènes fondamentaux qui s'y produisent. En micro-électronique, la dimension caractéristique des transistors atteint aujourd'hui une quinzaine de nanomètre et permet ainsi d'augmenter la capacité de calcul des processeurs par intégration d'un très grand nombre de transistors. Cependant, cette miniaturisation est de plus en plus difficile à mettre en œuvre et la bande passante de ces composants électroniques est limitée à quelques GHz. La nanophotonique s'appuie sur les processus d'interaction lumière-matière à l'échelle sub-micronique. Cela permet de réaliser des capteurs ultra-sensibles et des sources de lumières originales ou encore de concevoir des composants photoniques dont la bande passante est de l'ordre du THz et qui, une fois intégrés, mènent à l'élaboration de dispositifs ultra-rapides. De plus ces processus d'interaction peuvent mettre en jeu les états quantiques liés à la matière (niveaux électroniques atomiques, excitons...) et à l'excitation du champ électromagnétique (photons) et permet de sonder le comportement quantique à l'échelle nanométrique ouvrant la voie à des dispositifs nanophotoniques quantiques (source de photons uniques, porte logique quantique, etc).

Afin de discuter des enjeux de l'interaction lumière-matière à l'échelle nanométrique, il est pratique de considérer dans un premier temps la section efficace d'absorption d'un système atomique. Elle est notée σ_{abs} et représente la surface de capture d'un système excité par une onde de puissance par unité de surface I . La puissance absorbée est donnée par $P_{abs} = \sigma_{abs}I$ (σ_{abs} en m^2 , I en $W.m^{-2}$ et P_{abs} en W). Pour un système à deux niveaux, la section efficace d'absorption prend la forme [1]

$$\sigma_{abs} = \frac{3\lambda^2}{2\pi} \frac{\gamma_{rad}}{\gamma_t} \frac{\gamma_t^2}{(\omega - \omega_0)^2 + \gamma_t^2}, \quad (1.1)$$

où ω_0 est la fréquence de transition atomique, λ et ω sont respectivement la longueur d'onde et la fréquence de l'onde d'excitation et $\gamma_t = \gamma_{rad} + \gamma^*$ est le taux de déclin de l'état excité. Nous avons séparé la contribution radiative γ_{rad} et le taux de décohérence γ^* qui a pour origine l'interaction avec l'environnement. À la résonance, la section efficace est donnée par

$$\sigma_{abs}(\omega_0) = \frac{3\lambda^2}{2\pi} \frac{\gamma_{rad}}{\gamma_t}, \quad (1.2)$$

et vaut typiquement 10^{-20} m^2 pour une molécule à température ambiante. À titre de comparaison, un faisceau focalisé peut confiner la lumière sur une aire effective $A_{eff} \sim \pi \left(\frac{\lambda}{2}\right)^2$ (voir figure 1.1). Dans le domaine visible, cette aire vaut $A_{eff} \sim 10^{-13} \text{ m}^2$. On peut donc estimer l'efficacité d'absorption par la coopérativité

$$C_0 = \frac{P_{abs}}{P_{inc}} = \frac{\sigma_{abs} I}{A_{eff} I} = \frac{\sigma_{abs}}{A_{eff}}, \quad (1.3)$$

qui caractérise l'accord entre la section efficace d'absorption et l'aire de focalisation du champ électromagnétique incident. La faible valeur de la coopérativité C_0 (de l'ordre de 10^{-7}) met en évidence l'inadéquation entre le confinement de la lumière et la surface active du système atomique. Ceci explique les difficultés que l'on peut rencontrer en nanoscopie en champ lointain [2].

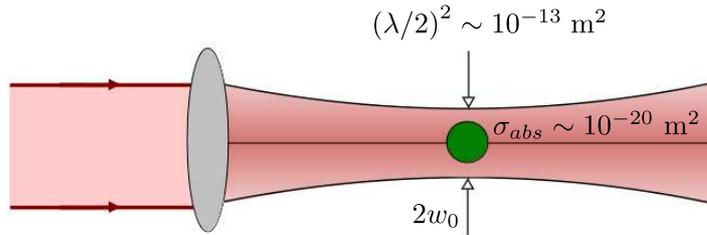


FIGURE 1.1 – Illustration du désaccord entre la surface d'un faisceau focalisé et la section efficace d'absorption d'une molécule fluorescente.

Le processus d'émission est un autre aspect qu'il faut prendre en compte pour discuter de l'interaction lumière-matière. Le taux d'émission spontanée d'un émetteur quantique (atome, molécule, boîte quantique) est donné par la règle d'or de Fermi et peut s'écrire

$$\Gamma = \frac{2\pi\omega_0}{\hbar\varepsilon_0} |\mathbf{d}_0|^2 \rho_u(\mathbf{r}, \omega_0), \quad (1.4)$$

où ε_0 est la permittivité du vide, \mathbf{d}_0 est le moment dipolaire de l'émetteur orienté selon le vecteur \mathbf{u} à la position \mathbf{r} et $\rho_u(\mathbf{r}, \omega_0)$ est la densité d'état photonique projetée selon l'orientation du moment dipolaire \mathbf{d}_0 . Selon l'environnement dans lequel est plongé l'émetteur (une cavité optique par exemple), la densité photonique sera modifiée ainsi que le taux d'émission Γ . Dans le vide ce taux vaut

$$\Gamma_0 = \frac{|\mathbf{d}_0|^2 \omega_0^3}{3\pi\varepsilon_0 \hbar c^3}. \quad (1.5)$$

L'émetteur est modélisé par un système à deux niveaux où l'état excité $|e\rangle$ et l'état fondamental $|g\rangle$ correspondent par exemple aux états électroniques d'un atome ou d'une molécule. Nous considérons que seule l'émission spontanée joue un rôle dans la relaxation de l'état excité. La population liée à cet état décroît exponentiellement avec un taux Γ et le temps de relaxation de l'état excité est donné par $T_1 = 1/\Gamma$. Dans le cadre de l'approche semi-classique, le mouvement du dipôle rayonnant subit un amortissement que l'on peut identifier comme étant le taux de relaxation des cohérences γ_c entre les états $|e\rangle$ et $|g\rangle$ dans les équations de Bloch optiques. Pour un émetteur non perturbé, le temps de cohérence $T_2 = 1/\gamma_c$ et le temps T_1 vérifient l'égalité $T_2 = 2T_1$. Lorsque l'émetteur est placé dans un milieu dense, le temps de cohérence diminue fortement car l'interaction avec l'environnement induit une source de décohérence [3]. On a alors

$$\frac{1}{T_2} = \frac{1}{2T_1} + \gamma^*, \quad (1.6)$$

où γ^* est la décohérence (ou déphasage) supplémentaire introduit par exemple par des collisions, l'interaction avec les phonons du réseau, etc. Ces processus de décohérence peuvent provoquer des fluctuations de l'énergie des états du système atomique ou encore un changement du moment dipolaire. En conséquence, au cours de deux émissions successives de photons uniques, la fréquence d'émission et la polarisation fluctuent, donnant lieu dans le cas limite (forte décohérence) à des paquets d'onde à un seul photon, à chaque fois différents. Les photons émis sont donc discernables et ne peuvent interférer. Pour caractériser l'indiscernabilité, nous

introduisons le facteur \mathcal{I} définie par le ratio $T_2/2T_1$. Pour deux photons émis successivement par un atome non perturbé par l'environnement ($\gamma^* = 0$ et donc $T_2 = 2T_1$), l'indiscernabilité vaut 1 et les photons sont considérés comme indiscernables. Lorsque l'atome interagit avec son environnement, l'augmentation du taux de décohérence γ^* diminue le temps de cohérence T_2 ainsi que l'indiscernabilité \mathcal{I} . À température ambiante, le taux de décohérence est 3 à 6 ordres de grandeurs plus élevé que le taux d'émission. L'indiscernabilité est alors proche de zéro :

$$\frac{T_2}{2T_1} = \frac{\Gamma}{\Gamma + 2\gamma^*} \sim 0. \quad (1.7)$$

Il existe aujourd'hui plusieurs manières d'augmenter le pouvoir d'absorption, l'émission spontanée et la cohérence d'émission :

- travailler à des températures cryogéniques ($T < 10$ K) permet de diminuer les processus incohérents induisant le déphasage γ^* . La section efficace d'absorption atteint alors une valeur maximale

$$\sigma_0 = \frac{3\lambda^2}{2\pi}, \quad (1.8)$$

puisque le taux γ_t devient alors très proche du taux radiatif γ_{rad} (voir équation (1.2)). Le temps de cohérence T_2 est quant à lui allongé jusqu'à la valeur limite $2T_1$ et l'indiscernabilité tend vers 1.

- Placer l'émetteur dans une cavité de grand facteur de qualité a pour effet d'allonger le temps d'interaction lumière-matière [4], augmentant ainsi les probabilités d'absorption. Par exemple, dans une cavité Fabry-Pérot, la coopérativité devient $C = 4C_0\mathcal{F}/\pi$ où \mathcal{F} est la finesse. Cela traduit une exaltation par le nombre d'allers-retours \mathcal{F}/π dans la cavité (dans une interprétation classique) et un facteur 4 de l'intensité de l'onde stationnaire créée [5]. L'émission spontanée est quant à elle exaltée par effet Purcell et le taux $\Gamma = 1/T_1$ peut alors devenir suffisamment important pour compenser la décohérence γ^* ($\Gamma \gg \gamma^*$ donc $T_2 \sim 2T_1$).
- Confiner le champ électromagnétique sur des dimensions comparables à celle de l'émetteur (c'est-à-dire $A_{eff} \ll (\lambda/2)^2$) permet d'augmenter la probabilité d'absorption par unité de temps et induit aussi une exaltation du processus d'émission spontanée. Franchir la limite de diffraction est rendu possible grâce à l'optique de champ proche ou à l'utilisation de structures plasmoniques [6].

Les deux derniers points sont traités plus en détail dans la section suivante.

1.2 Contrôle de nanosource

Nous présentons deux types de dispositif permettant le contrôle d'émetteurs quantiques. Le premier concerne les cavités optiques ayant la capacité de piéger la lumière assez longtemps pour augmenter le temps d'interaction. Le second englobe les structures plasmoniques rendant possible le confinement de la lumière au delà de la limite de diffraction.

1.2.1 Cavités optiques

Dans une cavité optique, la coopérativité devient [5] :

$$C = \frac{g^2}{2\gamma_c n_1 \Gamma_0}, \quad (1.9)$$

où g est le couplage de l'émetteur au mode de cavité. γ_c et $n_1\Gamma_0$ sont respectivement les pertes du mode de cavité et le taux de relaxation de l'émetteur dans un milieu diélectrique homogène d'indice optique n_1 . Lorsque $g \ll \gamma_c$ ($C \ll 1$), l'émetteur est faiblement couplé au mode de cavité ce qui entraîne une accélération du processus d'émission. Cette exaltation de l'émission spontanée est caractérisée par le facteur de Purcell

$$F_p = \frac{\Gamma_{cav}}{n_1\Gamma_0}, \quad (1.10)$$

avec Γ_{cav} le taux d'émission dans le mode de cavité. Pour une cavité mono-modale, la règle d'or de Fermi conduit à [7]

$$F_p = \frac{3}{4\pi^2} \left(\frac{\lambda_{em}}{n_1} \right)^3 \frac{Q}{V_{eff}}, \quad (1.11)$$

où Q est le facteur de qualité de la cavité et V_{eff} le volume effectif du mode de cavité intervenant dans le couplage. Dans une cavité Fabry-Pérot, l'expression du facteur de Purcell en fonction de la coopérativité est donnée par $F_p = 2C$ et montre un lien fort entre les approches quantique et semi-classique de l'interaction lumière-matière. De plus, elle apporte une vision simple des processus sous-jacent à cette interaction (ici la durée d'interaction).

Un exemple de réalisation expérimentale est donné sur la figure 1.2. Le signal de photoluminescence d'une boîte quantique, représenté en (c), est exalté d'un facteur 4 lorsque celle-ci est en résonance avec une micro-cavité Fabry-Pérot de facteur de qualité $Q \sim 5000$. Ces micro-cavités optiques sont utilisées pour concevoir

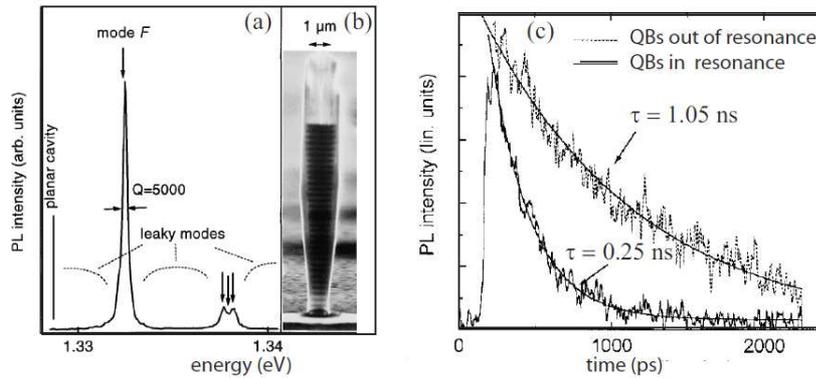


FIGURE 1.2 – (a) Réponse spectrale et facteur de qualité d'une micro-cavité optique réalisée à l'aide de miroir de Braggs (b) [8]. (c) Signal de photoluminescence à la résonance (trait plein) et hors résonance (trait pointillé) [9]. L'exaltation de fluorescence se manifeste par une diminution du temps de relaxation τ passant de 1.05 ns à 0.25 ns lorsque l'émetteur est résonant avec la cavité optique.

des sources de photons indiscernables [3, 10]. La diminution du temps de relaxation des populations T_1 par effet Purcell permet d'augmenter la cadence d'émission. Ainsi, l'indiscernabilité en cavité donnée par

$$\mathcal{I} = \frac{\Gamma_{cav}}{\Gamma_{cav} + 2\gamma^*} = \frac{1}{1 + \frac{2\gamma^*}{n_1\Gamma_0 F_p}}, \quad (1.12)$$

est augmentée et tend vers 1 lorsque le facteur de Purcell F_p est très grand. La figure 1.3 présente un exemple de source de photons indiscernables utilisée pour réaliser une porte quantique [11]. Le schéma de l'expérience est représenté en (a). Deux photons indiscernables sont issus de la micro-cavité Fabry-Pérot de facteur $F_p = 3.8$ et sont séparés spatialement pour être injectés ensuite dans une porte CNOT (Controlled NOT) 1.3(b). Cette porte quantique repose sur l'interférence de photons indiscernables et démontre l'intérêt de la cavité. La source de photon unique est caractérisée par la fonction d'auto-corrélation d'ordre 2 $g^2(\tau)$ représentée en 1.3(c) pour une excitation laser répétée toutes les 12.2 ns. La pureté obtenue est de $g^2(0) = 0.01 \pm 0.01$. À noter que dans cet exemple, la source est refroidie à 4 K. En général, cela est nécessaire pour diminuer la décohérence mais aussi pour augmenter le facteur de qualité Q du système émetteur+cavité. Ce dernier est donné par le plus bas des facteurs de qualité Q_{cav} et Q_0 associés respectivement à la cavité et au spectre d'émission de l'émetteur : $1/Q = 1/Q_{cav} + 1/Q_0$. À température ambiante le facteur Q_0 est médiocre et détériore le facteur global Q .

En régime de couplage fort on peut aussi produire des états quantiques originaux de la lumière (photons uniques, états multiphotoniques). Le facteur de Purcell n'est plus pertinent mais la coopérativité le reste. Le couplage g devient plus important que les pertes γ_c et donc la coopérativité (1.9) devient très supérieure à 1. L'émetteur se couple fortement à la cavité. Le photon peut alors être réabsorbé par l'émetteur avant de

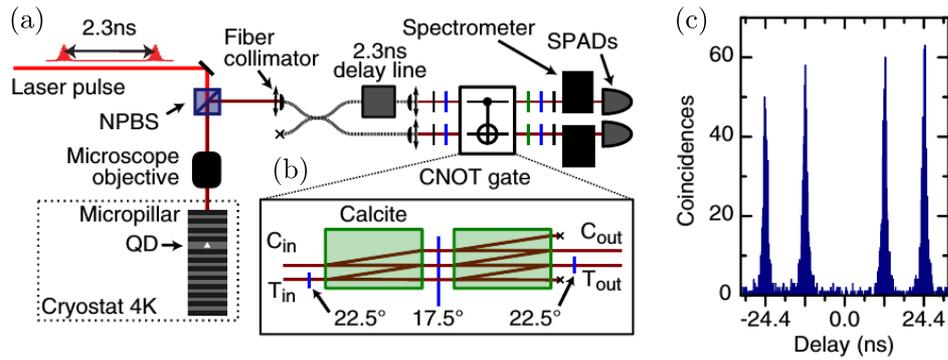


FIGURE 1.3 – (a) Schéma de l'expérience et (b) réalisation d'une porte quantique CNOT [11]. (c) Fonction d'autocorrélation d'ordre 2 de la source de photon unique.

sortir de la cavité. Dans le domaine temporel, ce comportement mène à des oscillations de Rabi de fréquence $\Omega_R \sim 2g$ qui sont amorties par les pertes de cavités et le taux de relaxation transverse de l'émetteur. La levée de dégénérescence qui apparaît dans le domaine spectral révèle les états habillés couplés $|1, \pm\rangle$ de l'échelle de Jaynes-Cummings représentée sur la figure 1.4(a). L'émetteur et la cavité forment alors un système couplé présentant des propriétés spécifiques que l'on ne peut interpréter par les deux sous-systèmes indépendants. Lorsqu'un photon occupe la cavité, la probabilité qu'un deuxième photon rentre est modifiée. Elle tombe à zéro lorsque le photon est résonant avec l'un des deux états $|1, +\rangle$ et $|1, -\rangle$ en raison de l'anharmonicité de l'échelle de Jaynes-Cummings. Ce phénomène de blocage de photon est illustré en bleu sur la figure 1.4(b) et permet de réaliser une source de photons uniques. Si l'absorption à deux photons coïncide avec l'énergie de l'un des deux états $|2, \pm\rangle$, le système émetteur+cavité peut absorber et émettre des paires de photons comme cela est illustré en rouge sur la figure 1.4(b). Il est alors possible d'envisager des dispositifs de dégroupage de paquet de photons. Un exemple de réalisation expérimentale de ces phénomènes de blocage de photons et

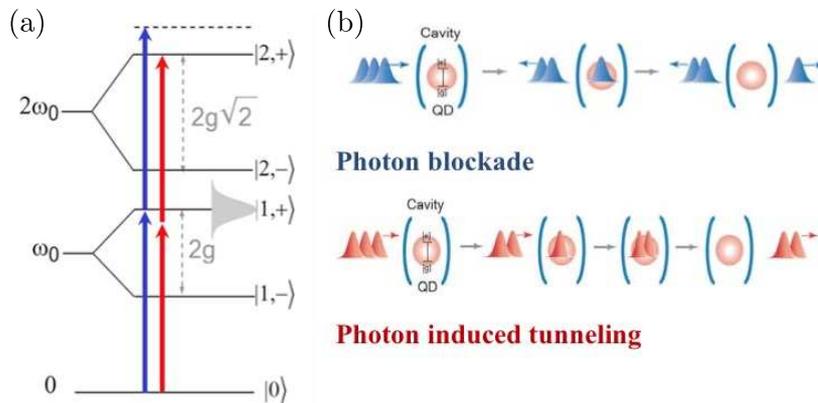


FIGURE 1.4 – (a) Diagramme d'énergie des états habillés $|n, \pm\rangle$ pour un émetteur couplé fortement à un mode de cavité [12]. (b) Schéma illustrant le dégroupage de photon par absorption à un ou deux photons [13].

d'absorption à deux photons est représenté sur la figure 1.5(a). Une boîte quantique est fortement couplée à une cavité à cristaux photoniques de facteur de qualité $Q \sim 10000$. Ce couplage fort est caractérisé par la levée de dégénérescence visible sur le spectre de photoluminescence 1.5(b). Une source laser cohérente envoie des impulsions lumineuses toutes les 12.5 ns et la fonction d'autocorrélation d'ordre 2 du faisceau laser réfléchi par la cavité est mesurée à l'aide d'un dispositif de Hanbury-Brown-Twiss (HBT). Pour une fréquence du laser fixée à la résonance de l'état $|1, +\rangle$, le blocage de photon induit une chute de la coïncidence entre les détections simultanées sur les détecteurs D_1 et D_2 représentée sur la figure 1.5(c) (dégroupement de photons). À l'inverse, la figure 1.5(d) montre que la coïncidence augmente lorsque le choix de la fréquence laser permet une absorption multiphotonique (groupement de photons).

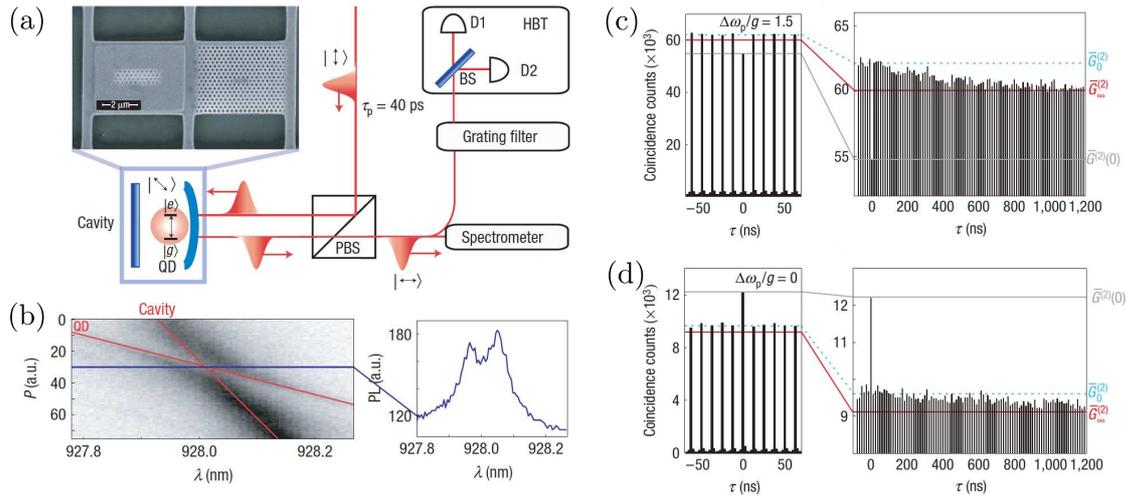


FIGURE 1.5 – (a) Schéma de l'expérience de blocage de photon mettant en jeu une cavité à cristaux photoniques de facteur de qualité $Q \sim 10000$ couplée à une boîte quantique [14]. (b) Signal de photoluminescence mesuré dans le domaine spectral révélant l'anti-croisement caractéristique du couplage fort. Fonction d'autocorrélation d'ordre 2 du signal réfléchi par la cavité pour un désaccord à la résonance $\Delta\omega_p = 1.5g$ (c) et $\Delta\omega_p = 0$ (d) entre le faisceau laser et la cavité.

Le rapport Q/V_{eff} intervenant dans l'expression du facteur de Purcell (1.15) est très utilisé pour évaluer l'efficacité de l'interaction lumière-matière dans une cavité optique donnée. En fonction de la géométrie utilisée, le facteur de qualité et le volume modal prennent des valeurs très différentes qui sont présentées sur la figure 1.6 pour trois types de géométrie : cavité Fabry-Perot, résonateur à mode de galeries et cristaux photoniques. Les facteurs de qualité accessibles sont très importants, allant de 2000 à 10^9 . Cependant Le volume modal est d'autant plus grand que Q est élevé, indiquant qu'il faut trouver un compromis entre durée d'interaction et confinement modal pour exalter l'interaction lumière-matière.

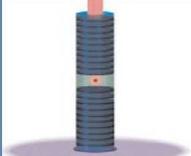
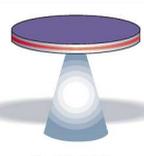
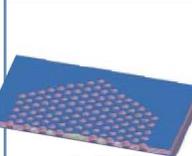
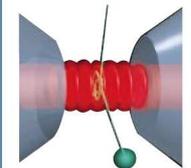
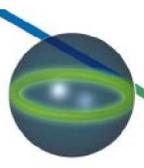
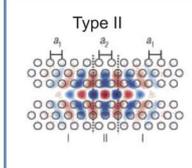
	Fabry-Perot	Whispering gallery	Photonic crystal
High Q	 $Q: 2,000$ $V: 5 (\lambda/n)^3$	 $Q: 12,000$ $V: 6 (\lambda/n)^3$	 $Q: 13,000$ $V: 1.2 (\lambda/n)^3$
Ultra-high Q	 $F: 4.8 \times 10^5$ $V: 1,690 \mu\text{m}^3$	 $Q: 8 \times 10^9$ $V: 3,000 \mu\text{m}^3$	 Type II $Q: 10^7$ $V_m: 2 (\lambda/n)^3$

FIGURE 1.6 – Tableau présentant les facteurs de qualité et les volumes modaux pour différentes géométries de cavité [4, 15].

1.2.2 Structures plasmoniques

Plasmons de surface localisés

Les structures métalliques supportent des modes appelés plasmons de surface localisés (LSP). Ces modes résultent du couplage d'une onde électromagnétique avec l'oscillation collective des électrons libres du métal.

Ils peuvent être confinés au delà de la limite de diffraction d'où une exaltation de l'interaction lumière-matière. Dans le cas d'une nanoparticule sphérique, on peut établir une décomposition modale des plasmons de surface

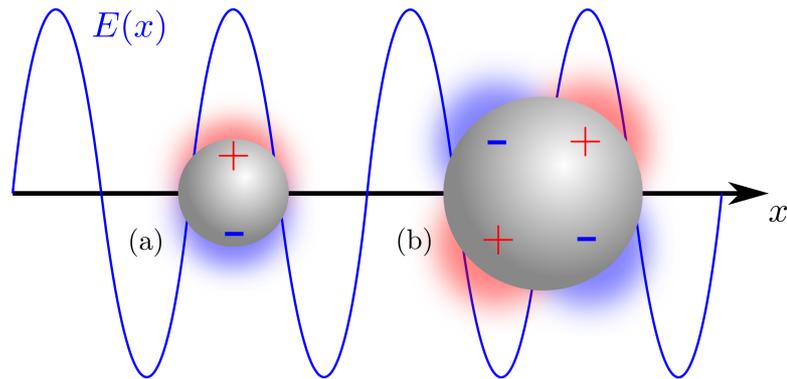


FIGURE 1.7 – (a) Représentation schématique de l'excitation du mode dipolaire d'une nanoparticule métallique soumise à un champ électromagnétique $E(x)$ (le champ est supposé uniforme sur l'ensemble de la particule). (b) Excitation du mode quadrupolaire pour une particule de diamètre comparable à la longueur d'onde : le champ inhomogène induit une distribution quadrupolaire des charges.

localisés (voir chapitre 2). Les principales propriétés se comprennent facilement lorsque l'on considère l'excitation d'une particule par une onde plane en représentation classique (figure 1.7). Pour de petites particules, le champ électromagnétique va provoquer les oscillations libres du métal, ce qui correspond à l'excitation du mode dipolaire LSP_1 (figure 1.7(a)). Ce mode est caractérisé par deux lobes fortement confinés en champ proche (terme en $1/r^3$). De plus, le mode peut rayonner en champ lointain (rayonnement dipolaire en $1/r$) ce qui en fait un mode à fuites radiatives. Dans le cas du mode quadrupolaire (figure 1.7(b)), il ne pourra être excité que si le champ varie sur les dimensions de la particule. Ce mode est aussi fortement confiné mais est généralement considéré comme un mode sombre car il ne peut pas se coupler efficacement avec une onde propagative pour de petites particules. Dans cette représentation classique, les pertes des modes élevés (LSP_n , $n \geq 2$) sont donc essentiellement des pertes par absorption dans le métal alors que le mode dipolaire présente des pertes par absorption et des pertes radiatives.

Vers la plasmonique quantique

Plusieurs travaux expérimentaux ont confirmé que l'excitation de ces plasmons de surface localisés par des émetteurs quantiques engendrait une exaltation de l'émission de fluorescence d'une molécule unique [16, 17]. Le schéma de la figure 1.8(a) présente le dispositif expérimental utilisé dans [16]. Un objectif de microscope est utilisé pour focaliser un faisceau laser sur un échantillon de molécules fluorescentes (Nile Blue) et une nanoparticule d'or de diamètre $d = 80$ nm est placée à une distance contrôlable z de cet échantillon. Les taux de fluorescence mesuré et théorique sont représentés sur la figure 1.8(b) par les points noirs et la courbe rouge respectivement. Nous voyons clairement une exaltation de fluorescence pour une distance z allant de 50 nm à 5 nm. Cependant, le taux diminue drastiquement lorsque $z < 5$ nm. L'excitation de modes non-radiatifs très localisés à la surface de la nanoparticule métallique provoque cette inhibition de fluorescence (quenching). Le rendement quantique, défini par le rapport entre le nombre de photons émis et le nombre de photons absorbés, va alors chuter. On peut d'ailleurs voir sur les images de fluorescence mesurée 1.8(c) et simulée 1.8(d) à $z \approx 2$ nm que l'émission de la molécule présente un trou en son centre. La compétition entre les processus d'exaltation et d'inhibition mène à une distance z optimale qui doit être prise en compte si l'on souhaite conserver un rendement quantique convenable. Des travaux récents ont permis de montrer qu'il est possible de réduire le phénomène d'inhibition de l'émission spontanée en utilisant des cavités plasmoniques de géométrie particulière [18–20]. La figure 1.9(a) présente un exemple de source lumineuse viable constituée d'une nanoantenne cubique d'argent située à proximité d'un film d'or. L'intervalle entre ces deux structures forme la cavité plasmonique dans laquelle les émetteurs quantiques interagissent avec un mode plasmonique fortement confiné sur les côtés du cube comme le montre le facteur de Purcell de quelques milliers 1.9(b). Le rendement quantique d'un émetteur couplé à ce type de structure peut atteindre 50 % (voir figure 1.9(c)) et le rayonnement radiatif de l'antenne cubique est très directionnel. Ceci conduit à une exaltation importante du

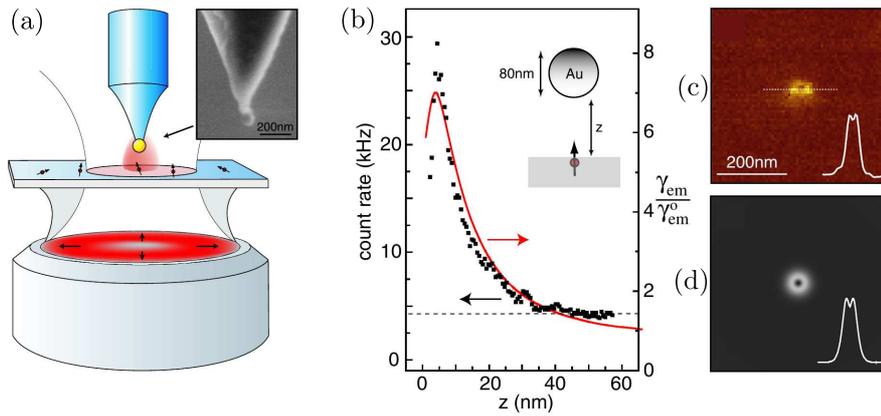


FIGURE 1.8 – (a) Schéma de l'expérience d'exaltation de fluorescence mis en oeuvre dans [16]. (b) Évolution du taux de fluorescence mesuré (points noirs) et théorique (courbe rouge) en fonction de la distance z séparant la nanoparticule d'or de l'échantillon de molécules fluorescentes. Image de fluorescence d'une molécule mesurée (c) et simulée (d) pour une distance $z \approx 2$ nm.

signal de fluorescence comme le montre la figure 1.9(d). Contrairement aux cavités optiques pour lesquelles les hauts facteurs de qualité, ou temps d'interaction élevé, limite la cadence d'émission de photon, la plasmonique ne souffre pas de cette limitation car l'efficacité de l'interaction lumière-matière repose principalement sur le confinement du rayonnement. De ce fait, ce type de cavités plasmoniques est approprié pour la conception de source à photon unique à haute cadence (~ 90 GHz pour [19]). Leur conception repose sur la capacité à introduire un unique émetteur dans l'intervalle entre la nanoantenne et le film métallique.

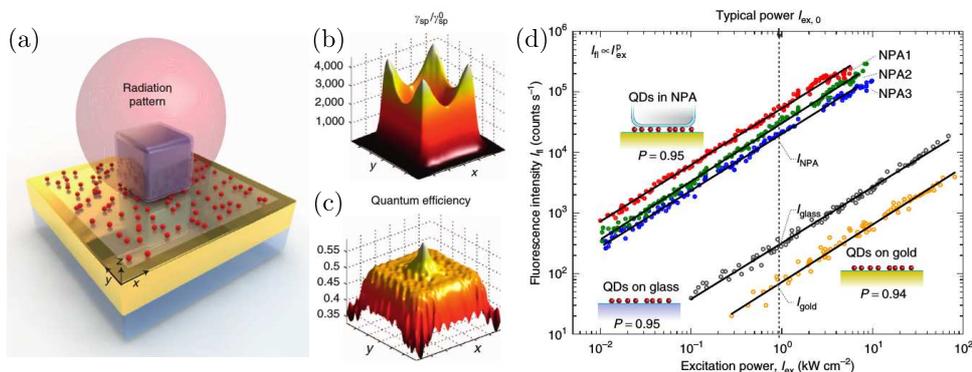


FIGURE 1.9 – (a) Cavité plasmonique constituée d'un nanocube d'argent de coté ~ 75 nm situé à proximité d'un film d'or [19]. (b) et (c) Facteur de Purcell et rendement quantique théorique pour un émetteur situé dans un intervalle inférieur à 10 nm entre le cube et le film. (d) Évolution de l'intensité du signal de fluorescence en fonction de la puissance du laser exciteur.

En raison des nombreuses pertes inhérentes aux structures plasmoniques, le temps de relaxation des plasmons est très court (de l'ordre de 10 fs) et limite très fortement le temps d'interaction. Pour atteindre le régime de couplage fort, il est nécessaire que la période des oscillations de Rabi soit plus faible que ce temps de relaxation. Il faut alors trouver des structures plasmoniques offrant des confinements du champ assez fort pour compenser la faiblesse des facteurs de qualité de ces structures. Il existe aujourd'hui deux exemples de réalisation expérimentale du couplage fort faisant intervenir un nombre restreint d'émetteurs [21, 22]. La première expérience fait intervenir une nanocavité plasmonique constituée d'une nanoparticule d'or de rayon $R = 40$ nm située à proximité d'un film d'or d'une épaisseur de 70 nm. L'espacement entre ces deux structures est de 0.9 nm et induit donc un volume modale effectif très faible. La concentration du rayonnement confiné est suffisamment importante pour établir un couplage fort avec un émetteur placé dans cet espacement. Le spectre de diffusion mesuré pour un dipôle orienté perpendiculairement à la surface du film métallique est représenté sur la figure 1.10(a) et montre une levée de dégénérescence de 380 meV. Pour la seconde réalisation, des émetteurs

sont placés entre deux nanoprismes d'argent en configuration "noeud papillon". La levée de dégénérescence obtenue pour 1, 2 ou 3 émetteurs est représentée sur la figure 1.10(b) et vaut respectivement de 176 meV, 288 meV et 224 meV. L'augmentation de la fréquence de Rabi de 176 à 288 meV indique un couplage collectif des deux émetteurs à la cavité plasmonique.

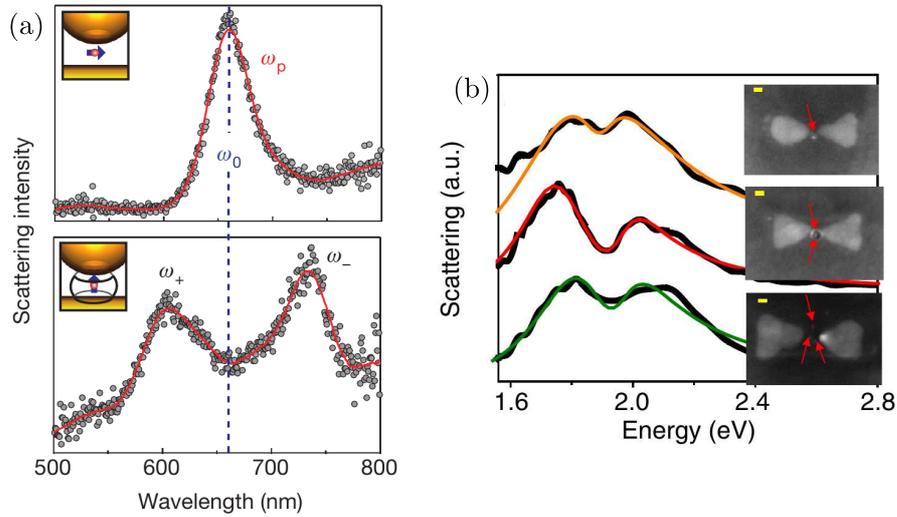


FIGURE 1.10 – (a) Spectre de diffusion pour un émetteur placé dans la cavité plasmonique considérée dans [21]. Le moment dipolaire est soit tangent (couplage faible) ou perpendiculaire (couplage fort) au miroir de la cavité. Spectre de diffusion pour une (courbe jaune), deux (courbe rouge) ou trois (courbe verte) boîtes quantiques placées à l'intérieure de la cavité plasmonique considérée dans [22].

1.2.3 Plasmonique quantique

Ces différents résultats expérimentaux montrent une forte analogie entre électrodynamique quantique en cavité et plasmonique quantique. En particulier, il est tentant de définir un facteur de Purcell plasmonique où l'exaltation repose sur le confinement modal plutôt que le facteur de qualité [23]. D'ailleurs, plusieurs expériences ont établi le comportement quantique des plasmons de surface [24, 25] : interférence de plasmons uniques [26–28] et couplage fort molécule-plasmon [21, 29, 30]. Enfin de récents travaux indiquent que le couplage de sources de photons uniques à des nanostructures plasmoniques pourraient permettre de réaliser des sources de photons indiscernables à température ambiante [31–33]. L'exaltation du taux d'émission (facteur de Purcell) permet l'émission de photons avant que la décohérence ait lieu. Transposer les concepts de l'électrodynamique en cavité (effet Purcell, couplage fort, interférence Hang Ou Mandel...) à la nanophotonique permettrait donc de réaliser des dispositifs originaux intégrés sur des puces photoniques (nanolaser, SPASER [34] ; transistor à photon unique [35] ; etc) et il est nécessaire de disposer d'un formalisme adapté à la plasmonique quantique.

Une première approche repose sur une description classique de l'interaction émetteur-plasmon, traitée comme un dipôle oscillant en présence d'une nanoparticule plasmonique [15, 36, 37]. Le champ électrique diffusé en \mathbf{r} par un dipôle \mathbf{p} en \mathbf{r}_0 en présence de nanostructures peut se mettre sous la forme

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}) = \frac{k_0^2}{\varepsilon_0} \bar{\bar{\mathbf{G}}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega) \cdot \mathbf{p}, \quad (1.13)$$

où $\bar{\bar{\mathbf{G}}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega)$ est le tenseur de Green en présence des nanostructures. On peut en déduire l'exaltation du taux d'émission selon

$$\frac{\Gamma}{n_1 \Gamma_0} = \frac{6\pi}{n_1 k_0} \Im \left[\bar{\bar{\mathbf{G}}}(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_0, \omega_0) \right]. \quad (1.14)$$

Lorsqu'une décomposition modale du tenseur de Green est possible, on peut définir un facteur de Purcell tel que

$$F_p = \frac{\Gamma_n}{n_1 \Gamma_0} = \frac{3}{4\pi^2} \left(\frac{\lambda}{n_1} \right)^3 \frac{Q}{V}, \quad (1.15)$$

où Q est le facteur de qualité du mode plasmon et V son volume modal. Cette description heuristique pose cependant des difficultés car les plasmons localisés sont des modes à fuite et il n'est pas possible d'utiliser la définition conventionnelle du volume modal (confinement énergétique du mode). Par exemple, le mode dipolaire LSP_1 est représenté sur la figure 1.11. On distingue deux lobes en champ proche représentatif du mode



FIGURE 1.11 – Représentation des lignes de champ pour le mode dipolaire d'une nanoparticule. La carte de couleur représente l'intensité du champ électrique.

dipolaire mais aussi le rayonnement en champ lointain, montrant que le volume modal n'est pas défini. Toutefois, dans l'approximation quasi-statique, on peut définir un volume modal associé à la contribution champ proche uniquement et obtenir un accord qualitatif avec le facteur de Purcell [23]. Récemment, Sauvan *et al.* ont développé un formalisme classique sur le concept de quasi-modes normaux qui permet de définir exactement un volume modal pour les systèmes ouverts [38]. Cela conduit à un volume modal complexe qui étend la définition du facteur de Purcell en présence de fuites. Finalement, les problématiques de la plasmonique quantique rejoignent celle de la quantification de système ouverts [39–41] et pose surtout la difficulté de la quantification du champ électromagnétique en milieu dispersif et absorbant. En 2010, Waks et Sridharan ont proposé un modèle cQED pour la plasmonique quantique [42]. Ce modèle est basé sur l'approximation quasi-statique des plasmons localisés qui permet de définir un Hamiltonien puis les opérateurs plasmons selon le principe de correspondance. Cette approche heuristique constitue un premier succès vers une description complète de la plasmonique quantique. Cependant, sa justification à partir des principes premiers est discutable, et plus généralement la quantification du champ électromagnétique en milieu dispersif et absorbant n'est pas résolue pour des matériaux de taille finie (bulk) [42–48]. Nous nous appuyons notamment sur les travaux de Welsch et ses collaborateurs [43] qui conduisent à définir un opérateur du champ électromagnétique à partir du tenseur de Green. Nous présentons brièvement ce formalisme au chapitre 2 puisqu'il sera notre point de départ pour définir un Hamiltonien effectif faisant un lien entre électrodynamique quantique en cavité et plasmonique quantique.

Chapitre 2

Modèles effectifs pour la plasmonique quantique

Sommaire

2.1	Quantification en milieu dispersif et absorbant	20
2.1.1	Équations de Maxwell et fluctuations quantiques	20
2.1.2	Base des harmoniques sphériques	22
2.1.3	Développement de Mie du tenseur de Green	23
2.2	Quantification des modes plasmoniques	24
2.2.1	Interaction quantique entre émetteurs et plasmons de surfaces localisés	24
2.2.2	Décomposition modale de l'interaction	25
2.2.3	Interdépendance entre émetteur et orthonormalisation de Löwdin	27
2.2.4	Élimination des états sombres	29
2.3	Modèle effectif discret	31
2.3.1	Émetteur unique	32
2.3.2	Plusieurs émetteurs	36
2.4	Équation maîtresse pour la plasmonique quantique	37
2.4.1	Pseudo-modes et Quasi-modes	37
2.4.2	Processus radiatif et profil de Fano	39
2.4.3	Processus non-radiatif	43
2.5	Conclusion	46
2.A	Tenseur de Green pour une sphère métallique plongée dans un milieu diélectrique homogène	48
2.B	Dérivation de l'équation maîtresse en régime de couplage fort	50
2.B.1	Équations de Langevin	50
2.B.2	Élimination de l'environnement	52

Dans ce chapitre, nous allons étudier l'interaction d'un ou plusieurs émetteurs quantiques avec les plasmons de surfaces localisés supportés par une nano-particule métallique. Pour décrire le comportement de ce type de système ouvert nous devons construire un modèle dédié reposant sur la décomposition modale de la densité d'états locale. Les nombreuses pertes radiatives et non-radiatives des modes plasmons issus de cette décomposition seront modélisées soit par un Hamiltonien effectif non-Hermitien, soit par une équation maîtresse respectant la forme Lindbladienne. Ce modèle peut être appliqué au cas de plusieurs émetteurs. Nous verrons que la disposition spatiale de ces derniers peut induire des couplage croisés et permettre des échanges de population entre émetteurs. Enfin, nous montrerons que l'augmentation de la taille de la nano-particule peut induire des pertes déformant les profils des fonctions de couplage des modes plasmoniques.

2.1 Quantification en milieu dispersif et absorbant

L'approche quantique de la réponse de nanostructures plasmoniques se heurte à deux difficultés majeures :

- la quantification en milieu dispersif et absorbant
- la normalisation des modes plasmons qui sont des modes à fuites.

La quantification en milieu dispersif et absorbant a fait l'objet de nombreux travaux [43–46, 49] et reste sujet à débats [47, 48]. Nous nous sommes appuyés sur l'approche proposée par Welsch et al. [43] que nous présentons brièvement ici, en indiquant les points qu'il reste à résoudre. La normalisation des modes à fuites est un problème qui dépasse le cadre de la plasmonique quantique. Cela conduit à la notion de modes quasi-normaux (QNM). Cette classe étend la notion de modes (stationnaires) en présence de pertes. Cela constitue un champ d'exploration mathématiques [50] avec des applications physiques allant de l'étude des trous noirs [51, 52] jusqu'à la nanophotonique [53]. Même si l'utilisation de QNM dans la plasmonique quantique semble prometteuse [39, 54], la normalisation des modes reste un enjeu délicat [55–57] et la notion de complétude reste à établir [58]. Nous avons opté pour une approche équivalente mais qui évite cette difficulté. Nous nous sommes limités à une géométrie simple ; des émetteurs à deux niveaux couplés à une nanoparticule sphérique. Nous verrons que les propriétés mathématiques des harmoniques sphériques (orthogonalité, normalisation) permettent d'obtenir des résultats importants avec une clarification des phénomènes physiques sous-jacents au couplage émetteur-particule.

2.1.1 Équations de Maxwell et fluctuations quantiques

La quantification du champ électromagnétique pour une nanosphère métallique peut être faite à partir du développement modal de ce champ dans un milieu à symétrie sphérique. Pour cela nous suivons la procédure présentée dans les références [43, 45]. Nous écrivons tout d'abord les équations de Maxwell dans le domaine fréquentiel

$$\nabla \cdot (\varepsilon_0 \varepsilon(\mathbf{r}, \omega) \mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega)) = \rho_N(\mathbf{r}, \omega), \quad (2.1)$$

$$\nabla \times \mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega) = i\omega \mathbf{B}(\mathbf{r}, \omega), \quad (2.2)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{B}(\mathbf{r}, \omega) = 0, \quad (2.3)$$

$$\nabla \times \mathbf{B}(\mathbf{r}, \omega) = \mu_0 \mathbf{j}_N(\mathbf{r}, \omega) - i \frac{\omega}{c^2} \varepsilon(\mathbf{r}, \omega) \mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega), \quad (2.4)$$

avec $\varepsilon(\mathbf{r}, \omega)$ la permittivité relative du milieu, qui est une fonction complexe dépendant de la fréquence

$$\varepsilon(\mathbf{r}, \omega) = \varepsilon_R(\mathbf{r}, \omega) + i\varepsilon_I(\mathbf{r}, \omega). \quad (2.5)$$

La densité de charge $\rho_N(\mathbf{r}, \omega)$ et la densité de courant $\mathbf{j}_N(\mathbf{r}, \omega)$, introduits dans les équations (2.1) et (2.4), sont des termes sources résultants de la fluctuation $\mathbf{P}_N(\mathbf{r}, \omega)$ du champ de polarisation $\mathbf{P}(\mathbf{r}, \omega)$

$$\rho_N(\mathbf{r}, \omega) = -\nabla \cdot \mathbf{P}_N(\mathbf{r}, \omega), \quad (2.6)$$

$$\mathbf{j}_N(\mathbf{r}, \omega) = -i\omega \mathbf{P}_N(\mathbf{r}, \omega), \quad (2.7)$$

avec

$$\mathbf{P}(\mathbf{r}, \omega) = \varepsilon_0 [\varepsilon(\mathbf{r}, \omega) - 1] \mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega) + \mathbf{P}_N(\mathbf{r}, \omega). \quad (2.8)$$

Ces fluctuations vont permettre par la suite de tenir compte de l'absorption du milieu dans la procédure de quantification. En effet, le théorème de fluctuation-dissipation établit que tout phénomène d'absorption ou d'amortissement est lié à la présence de fluctuations ou bruits. Or initialement les équations de Maxwell donnent l'évolution du champ électromagnétique d'un point de vue classique. Cela revient donc à étudier la valeur moyenne quantique du champ qui peut être nulle dans le cas de fluctuations. Il est alors nécessaire d'ajouter des termes sources dans les équations de Maxwell afin qu'elles soient en accord avec la nature du champ électromagnétique que l'on souhaite quantifier. Les fluctuations des densités de courant $\mathbf{j}_N(\mathbf{r}, \omega)$ et de charge $\rho_N(\mathbf{r}, \omega)$ serviront à définir les opérateurs de création et d'annihilation associés aux excitations élémentaires du système. Il est intéressant de noter que dans les travaux de Henry et Kazarinov [59], un courant source similaire

à $\mathbf{j}_N(\mathbf{r}, \omega)$ est introduit dans le cadre de l'étude du bruit quantique présent dans les systèmes photoniques tels que les cavités laser, les amplificateurs optiques, les photodétecteurs, etc. L'équation d'onde du champ électrique est obtenue en combinant les équations (2.2) et (2.4) et s'écrit

$$\nabla \times \nabla \times \mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega) - \frac{\omega^2}{c^2} \varepsilon(\mathbf{r}, \omega) \mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega) = i\omega\mu_0 \mathbf{j}_N(\mathbf{r}, \omega). \quad (2.9)$$

La solution à cette équation est représentée à l'aide du tenseur de Green

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega) = i\omega\mu_0 \int d^3\mathbf{r}' \bar{\bar{\mathbf{G}}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega) \cdot \mathbf{j}_N(\mathbf{r}', \omega) \quad (2.10)$$

donnant la réponse du champ électrique en \mathbf{r} à une excitation située en \mathbf{r}' et qui doit satisfaire l'équation d'onde de Maxwell-Helmholtz :

$$\nabla \times \nabla \times \bar{\bar{\mathbf{G}}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega) - \frac{\omega^2}{c^2} \varepsilon(\mathbf{r}, \omega) \bar{\bar{\mathbf{G}}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega) = \bar{\bar{\delta}}(\mathbf{r} - \mathbf{r}'), \quad (2.11)$$

avec $\bar{\bar{\delta}}(\mathbf{r} - \mathbf{r}') = \bar{\bar{\mathbb{1}}}\delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}')$. Les plasmons sont définis par des états particuliers résultant de l'hybridation des modes du champ électromagnétique avec les modes associés à l'oscillation collective des électrons de conduction de la nanostructure métallique. Les fluctuations du champ de polarisation $\mathbf{P}_N(\mathbf{r}, \omega)$ sont la manifestation de ces oscillations et vont servir pour construire les opérateurs bosoniques et la base des excitations élémentaires sur laquelle va reposer la fonction d'onde du système. La procédure de quantification utilisée est détaillée dans les références [43, 45]. La construction d'opérateurs bosoniques nécessite de normaliser la densité de courant (2.7) comme cela est fait dans la référence [60] :

$$\mathbf{f}(\mathbf{r}, \omega) = \frac{1}{\omega} \sqrt{\frac{\pi}{\hbar\varepsilon_0\varepsilon_I(\mathbf{r}, \omega)}} \mathbf{j}_N(\mathbf{r}, \omega). \quad (2.12)$$

Le principe de correspondance peut alors s'appliquer

$$\mathbf{f}(\mathbf{r}, \omega) \rightarrow \hat{\mathbf{f}}(\mathbf{r}, \omega), \quad (2.13)$$

afin de définir les opérateurs bosoniques polaritoniques de création et d'annihilation $\hat{\mathbf{f}}^\dagger(\mathbf{r}, \omega)$ et $\hat{\mathbf{f}}(\mathbf{r}, \omega)$. Les excitations élémentaires polaritoniques sont déterminées à partir du vecteur d'état vide $|\mathbf{0}\rangle$ ainsi

$$|\mathbf{1}(\mathbf{r}, \omega)\rangle = \hat{\mathbf{f}}^\dagger(\mathbf{r}, \omega)|\mathbf{0}\rangle. \quad (2.14)$$

Les états $|\mathbf{0}\rangle$ et $|\mathbf{1}(\mathbf{r}, \omega)\rangle$ forment la base du sous espace associé au champ polaritonique. Ils sont représentés par des vecteurs géométriques dans l'espace à trois dimensions pour lesquels on associe un espace de Fock à chaque composante. L'opérateur $\hat{f}_i(\mathbf{r}, \omega)$ est la composante i du vecteur géométrique $\hat{\mathbf{f}}(\mathbf{r}, \omega)$ et respecte les relations de commutations suivantes :

$$\left[\hat{f}_i(\mathbf{r}, \omega), \hat{f}_j^\dagger(\mathbf{r}', \omega') \right] = \delta_{ij} \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}') \delta(\omega - \omega'), \quad (2.15)$$

$$\left[\hat{f}_i(\mathbf{r}, \omega), \hat{f}_j(\mathbf{r}', \omega') \right] = \left[\hat{f}_i^\dagger(\mathbf{r}, \omega), \hat{f}_j^\dagger(\mathbf{r}', \omega') \right] = 0. \quad (2.16)$$

L'expression du champ électrique quantifié peut maintenant être définie à partir de ces opérateurs en utilisant les relations (2.10) et (2.12) :

$$\hat{\mathbf{E}}(\mathbf{r}, \omega) = i\sqrt{\frac{\hbar}{\pi\varepsilon_0}} \frac{\omega^2}{c^2} \int d^3\mathbf{r}' \sqrt{\varepsilon_I(\mathbf{r}', \omega)} \bar{\bar{\mathbf{G}}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega) \hat{\mathbf{f}}(\mathbf{r}', \omega). \quad (2.17)$$

Chacune des composantes i de ce champ est donnée par une combinaison linéaire des opérateurs $\hat{f}_j(\mathbf{r}, \omega)$ ayant un poids relatif donné par les composantes $G^{ij}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega)$ du tenseur de Green :

$$\hat{E}_i(\mathbf{r}, \omega) = i\sqrt{\frac{\hbar}{\pi\varepsilon_0}} \frac{\omega^2}{c^2} \int d^3\mathbf{r}' \sqrt{\varepsilon_I(\mathbf{r}', \omega)} \sum_{j=1}^3 G^{ij}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega) \hat{f}_j(\mathbf{r}', \omega). \quad (2.18)$$

On constate que le champ électrique $\hat{\mathbf{E}}(\mathbf{r}, \omega)$ tend vers 0 lorsque $\varepsilon_I(\mathbf{r}, \omega)$ tend vers 0 donc l'équation (2.17) n'est pas valable dans le vide. Des travaux récents discutent de la construction d'un nouvel opérateur de champ incluant la contribution de l'espace libre [47]. Dans la section 2.4.2 nous proposerons un modèle heuristique conduisant à des pertes de Fano résolvant cette difficulté.

2.1.2 Base des harmoniques sphériques

Le tenseur de Green est un élément clé de la quantification dans ce modèle. Il peut être calculé par une approche classique (réponse à une excitation dipolaire). Nous discutons les propriétés de ce tenseur qui seront utiles pour quantifier les modes plasmoniques. Pour un milieu stratifié à symétrie sphérique, le tenseur de Green peut être étendu sur la base des harmoniques sphériques vectorielles [61]. Les propriétés de ces fonctions vectorielles nous permettront d'identifier et de décrire efficacement les résonances des modes plasmoniques supportés par une sphère métallique. Nous commençons d'abord par résoudre l'équation scalaire de Helmholtz :

$$(\nabla^2 + q^2) \psi(\mathbf{r}, q) = 0, \quad (2.19)$$

afin de trouver l'expression des fonctions $\psi(\mathbf{r}, q)$ sur lesquelles nous construirons les harmoniques sphériques vectorielles. Dans notre cas, le paramètre q aura la dimension d'un nombre d'onde. La solution de l'équation (2.19) s'exprime selon les fonctions propres des harmoniques sphériques :

$$\psi_{nm_e}(\mathbf{r}, q) = z_n(qr) P_n^m(\cos \theta) \frac{\cos}{\sin}(m\phi). \quad (2.20)$$

Le premier terme $z_n(qr)$ est, selon les conditions aux limites, une fonction de Bessel ou de Hankel dont seule la coordonnée radiale de \mathbf{r} intervient. L'indice n associé à cette fonction est l'indice harmonique primaire ou radial. Le second terme $P_n^m(\cos \theta)$ est le polynôme de Legendre associé à l'indice n et à l'indice harmonique secondaire ou angulaire m . Les indices e et o indiquent la parité de la fonction dépendant de ϕ (respectivement paire ou impaire). Les harmoniques sphériques vectorielles servant de base pour le développement du tenseur de Green s'expriment ainsi :

$$\mathbf{M}_{nm_e}(\mathbf{r}, q) = \nabla \times (\psi_{nm_e}(\mathbf{r}, q) \mathbf{r}), \quad (2.21)$$

$$\mathbf{N}_{nm_e}(\mathbf{r}, q) = \frac{1}{q} \nabla \times \nabla \times (\psi_{nm_e}(\mathbf{r}, q) \mathbf{r}), \quad (2.22)$$

$$\mathbf{L}_{nm_e}(\mathbf{r}, q) = \nabla \psi_{nm_e}(\mathbf{r}, q) \mathbf{r}, \quad (2.23)$$

où $\mathbf{M}(\mathbf{r}, q)$ et $\mathbf{N}(\mathbf{r}, q)$ sont les vecteurs propres de l'opérateur

$$\nabla \times \nabla \times \mathbf{K}(\mathbf{r}, q) = q^2 \mathbf{K}(\mathbf{r}, q) \quad (2.24)$$

avec comme valeur propre q^2 . Les vecteurs $\mathbf{L}(\mathbf{r}, q)$ sont des vecteurs propres associés à des valeurs propres nulles. L'ensemble de ces vecteurs propres se développe sur la base $(\mathbf{e}_r, \mathbf{e}_\theta, \mathbf{e}_\phi)$ du système de coordonnées sphériques et leurs expressions analytiques sont obtenues en injectant la relation des harmoniques sphériques (2.20) dans les expressions (2.21), (2.22) et (2.23) :

$$\mathbf{M}_{nm_e}(\mathbf{r}, q) = \mp \frac{m}{\sin \theta} z_n(qr) P_n^m(\cos \theta) \frac{\sin}{\cos}(m\phi) \mathbf{e}_\theta - z_n(qr) \frac{dP_n^m(\cos \theta)}{d\theta} \frac{\cos}{\sin}(m\phi) \mathbf{e}_\phi \quad (2.25)$$

$$\begin{aligned} \mathbf{N}_{nm_e}(\mathbf{r}, q) &= \frac{n(n+1)}{qr} z_n(qr) P_n^m(\cos \theta) \frac{\cos}{\sin}(m\phi) \mathbf{e}_r, \\ &+ \frac{1}{qr} \frac{d(rz_n(qr))}{dr} \left[\frac{dP_n^m(\cos \theta)}{d\theta} \frac{\cos}{\sin}(m\phi) \mathbf{e}_\theta \mp \frac{m}{\sin \theta} P_n^m(\cos \theta) \frac{\sin}{\cos}(m\phi) \mathbf{e}_\phi \right], \end{aligned} \quad (2.26)$$

$$\begin{aligned} \mathbf{L}_{nm_e}(\mathbf{r}, q) &= \frac{dz_n(qr)}{dr} P_n^m(\cos \theta) \frac{\cos}{\sin}(m\phi) \mathbf{e}_r \\ &+ \frac{z_n(qr)}{r} \frac{dP_n^m(\cos \theta)}{d\theta} \frac{\cos}{\sin}(m\phi) \mathbf{e}_\theta \mp \frac{mz_n(qr)}{r \sin \theta} P_n^m(\cos \theta) \frac{\sin}{\cos}(m\phi) \mathbf{e}_\phi. \end{aligned} \quad (2.27)$$

La base formée par les vecteurs $\mathbf{M}_{nmp}(\mathbf{r}, q)$, $\mathbf{N}_{nmp}(\mathbf{r}, q)$ et $\mathbf{L}_{nmp}(\mathbf{r}, q)$ est complète pour un ensemble d'indice prenant les valeurs $n = 0, 1, 2, \dots, \infty$, $m = 0, 1, 2, \dots, n$, $p = e, o$ (pour la parité) et $q \geq 0$. Les harmoniques sphériques possèdent des propriétés d'orthogonalité bien définies. Ainsi, la configuration sphérique constitue une référence réaliste et utile pour dériver un formalisme dédié à la nano-optique quantique. Les

relations d'orthogonalité entre deux vecteurs propres $\mathbf{K}(\mathbf{r}, q)$ et $\mathbf{K}'(\mathbf{r}, q')$ sont définies et calculées dans les références [62, 63]. Elles s'écrivent selon le produit :

$$\langle\langle \mathbf{K}(q), \mathbf{K}'(q') \rangle\rangle = \int d^3r \mathbf{K}^*(\mathbf{r}, q) \cdot \mathbf{K}'(\mathbf{r}, q'). \quad (2.28)$$

avec \mathbf{K} et \mathbf{K}' étant l'un des trois vecteur \mathbf{M} , \mathbf{N} , \mathbf{L} . Pour un milieu stratifié dont la variable q dépend de r , les relations d'orthogonalité s'écrivent :

$$\langle\langle \mathbf{K}_{nmp}(q), \mathbf{K}'_{n'm'p'}(q') \rangle\rangle = S_{nn'}(q, q') Q_{nmp}^K(q) \delta_{nn'} \delta_{mm'} \delta_{pp'}, \quad (2.29)$$

où $Q_{nmp}^K(q)$ est un facteur de normalisation prenant la forme :

$$Q_{nmp}^K(q) = \begin{cases} \frac{\pi^2 n(n+1)(n+m)!}{q^2(2n+1)((n-m)!)} (1 \pm \delta_{m0}) & \mathbf{K} = \mathbf{M}, \mathbf{N}, \\ \frac{\pi^2 (n+m)!}{q^2(2n+1)(n-m)!} (1 \pm \delta_{m0}) & \mathbf{K} = \mathbf{L}, \end{cases} \quad (2.30)$$

et $S_{nn'}(q, q')$ une fonction qui est définie par :

$$S_{nn'}(q, q') = \int_0^\infty dr r^2 z_n(q(r)) z_{n'}(q'(r)). \quad (2.31)$$

Le choix d'une fonction de Bessel ou de Hankel pour $z_n(q(r))$ influe seulement sur la valeur du facteur de normalisation $Q_{nmp}^K(q)$.

2.1.3 Développement de Mie du tenseur de Green

Nous nous plaçons dans le cas particulier d'un milieu à symétrie sphérique stratifié en deux couches comme illustré sur la figure 2.1. La nanoparticule métallique constituera la première couche et le milieu diélectrique l'environnant sera la seconde. Dans le cas où l'on considère la position \mathbf{r} du champ électrique dans la couche f

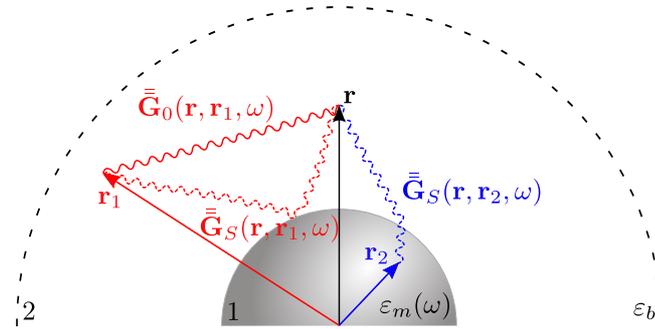


FIGURE 2.1 – Développement du tenseur de Green pour une sphère métallique plongée dans un milieu diélectrique. La position \mathbf{r} à laquelle on calcule le champ électrique est prise dans la couche externe. La décomposition du tenseur de Green est illustrée dans deux cas de figure. En rouge, le point source \mathbf{r}_1 se trouve dans la même couche que le point champ et en bleu, le point source \mathbf{r}_2 se trouve dans une couche différente.

et la position \mathbf{r}' de la source dans la couche s , le tenseur de Green peut se décomposer selon la somme :

$$\bar{\bar{\mathbf{G}}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega) = \bar{\bar{\mathbf{G}}}_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega) \delta_{fs} + \bar{\bar{\mathbf{G}}}_S(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega). \quad (2.32)$$

Le premier terme apparaît seulement lorsque les points champ et source (respectivement \mathbf{r} et \mathbf{r}') sont dans la même couche. Il tient compte de la propagation directe entre ces deux points. Le second terme représente la propagation après diffusion par la particule. Le développement des contributions directe et diffusée sur les harmoniques sphériques vectorielles sont données dans l'annexe 2.A. Les équations (2.191), (2.192) et (2.197) nous montrent que le tenseur de Green total peut être étendu sur la base produit tensoriel des harmoniques sphériques vectorielles. Par la suite nous allons considérer la décomposition modale du tenseur de Green selon l'indice harmonique primaire n :

$$\bar{\bar{\mathbf{G}}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega) = \sum_{n=0}^{\infty} \bar{\bar{\mathbf{G}}}_n(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega), \quad (2.33)$$

avec

$$\begin{aligned} \bar{\mathbf{G}}_n(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega) = & \sum_{p=e,o} \sum_{m=0}^n \frac{1}{k_s^2} \delta_{fs} \bar{\delta}_{nmp}(\mathbf{r} - \mathbf{r}') + \sum_{j,k=0,1} [\mathcal{A}_{nmp}^{(jk)}(\omega) \mathbf{M}_{nmp}^{(j)}(\mathbf{r}, k_f) \otimes \mathbf{M}_{nmp}^{(k)}(\mathbf{r}', k_s) \\ & + \mathcal{B}_{nmp}^{(jk)}(\omega) \mathbf{N}_{nmp}^{(j)}(\mathbf{r}, k_f) \otimes \mathbf{N}_{nmp}^{(k)}(\mathbf{r}', k_s)], \end{aligned} \quad (2.34)$$

où $\mathcal{A}_{nmp}^{(jk)}(\omega)$ et $\mathcal{B}_{nmp}^{(jk)}(\omega)$ sont des coefficients issus de l'unification des équations (2.191) et (2.192). Chaque mode plasmonique supporté par la nanoparticule métallique sera associé à un indice primaire n . D'après les relations d'orthogonalités (2.29) et en utilisant la relation

$$(\mathbf{a} \otimes \mathbf{b}) \cdot (\mathbf{c} \otimes \mathbf{d}) = (\mathbf{b} \cdot \mathbf{c}) \mathbf{a} \otimes \mathbf{d}, \quad (2.35)$$

nous pouvons déduire que les tenseurs de Green associés à deux modes plasmoniques différents sont orthogonaux :

$$\int d^3r \bar{\mathbf{G}}_n^*(\mathbf{r}_l, \mathbf{r}, \omega) \cdot \bar{\mathbf{G}}_{n'}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega') = \bar{\mathbf{0}} \quad \text{pour } n \neq n', \quad (2.36)$$

où \mathbf{r}_l et \mathbf{r}' sont deux vecteurs positions quelconques. Ceci nous amènera par la suite à décomposer la réponse optique de la nano-particule selon un ensemble de modes plasmoniques. Chacun de ces modes sera identifié par les indices harmoniques primaires n .

2.2 Quantification des modes plasmoniques

2.2.1 Interaction quantique entre émetteurs et plasmons de surfaces localisés

Champ polaritonique. Nous souhaitons décrire le comportement d'un ensemble d'émetteurs quantiques en interaction avec les plasmons de surface localisés d'une nanoparticule métallique (voir figure 2.2). L'énergie de

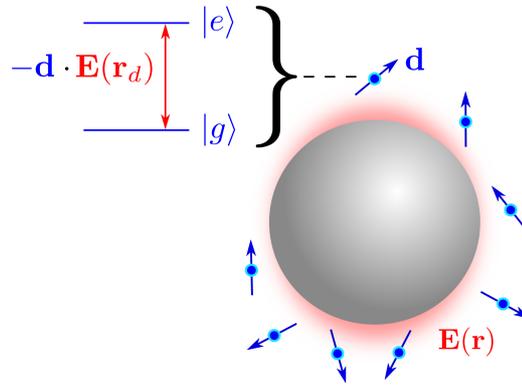


FIGURE 2.2 – Illustration de l'interaction de plusieurs émetteurs avec le champ électrique des plasmons de surface localisés d'une nanoparticule métallique.

l'ensemble des excitations polaritoniques constituant les plasmons de surface localisés est donné par l'Hamiltonien H_C obtenu en appliquant la diagonalisation de Fano [43]. Il s'écrit en fonction des opérateurs polaritoniques comme suit

$$\hat{H}_C = \int_0^{+\infty} d\omega \hbar\omega \int d^3r \hat{\mathbf{f}}^\dagger(\mathbf{r}, \omega) \cdot \hat{\mathbf{f}}(\mathbf{r}, \omega) \quad (2.37)$$

$$= \int_0^{+\infty} d\omega \hbar\omega \int d^3r \sum_{j=1}^3 \hat{f}_j^\dagger(\mathbf{r}, \omega) \hat{f}_j(\mathbf{r}, \omega). \quad (2.38)$$

Émetteurs quantiques. On considère ici le sous ensemble regroupant un nombre N_e d'émetteurs identiques modélisés par des systèmes à deux niveaux dont l'énergie de transition est notée $\hbar\omega_0 = \hbar(\omega_e - \omega_g)$ avec $\hbar\omega_g$ l'énergie de l'état fondamental $|g_l\rangle$ et $\hbar\omega_e$ l'énergie de l'état excité $|e_l\rangle$ de l'émetteur l . Les opérateurs de moment dipolaire sont définis par

$$\hat{\mathbf{d}}_{\pm}^{(l)} = \mathbf{d}^{(l)} \hat{\sigma}_{\pm}^{(l)}, \quad (2.39)$$

où $\mathbf{d}^{(l)}$ est le vecteur moment dipolaire et $\hat{\sigma}_{\pm}^{(l)}$ les opérateurs de saut quantique avec $\hat{\sigma}_{+}^{(l)} = |e_l\rangle\langle g_l|$ et $\hat{\sigma}_{-}^{(l)} = |g_l\rangle\langle e_l|$. L'énergie de cet ensemble est donnée par l'hamiltonien

$$\hat{H}_{QE} = \sum_{l=1}^{N_e} \hbar\omega_0 \hat{\sigma}_{+}^{(l)} \hat{\sigma}_{-}^{(l)}, \quad (2.40)$$

et la base du sous-espace sur lequel agit cet opérateur est donnée par le produit tensoriel des espaces de Hilbert à deux dimensions de chaque émetteur

$$\{|g_1\rangle, |e_1\rangle\} \otimes \{|g_2\rangle, |e_2\rangle\} \otimes \cdots \otimes \{|g_{N_e}\rangle, |e_{N_e}\rangle\}. \quad (2.41)$$

Interaction. L'interaction entre émetteurs et champ polaritonique est définie sur un ensemble étant produit tensoriel des deux sous ensembles décrits ci-dessus. La base associée est donnée par

$$\{|g_1\rangle, |e_1\rangle\} \otimes \{|g_2\rangle, |e_2\rangle\} \otimes \cdots \otimes \{|g_{N_e}\rangle, |e_{N_e}\rangle\} \otimes \{|\mathbf{0}\rangle, |\mathbf{1}(\mathbf{r}, \omega)\rangle\}, \quad (2.42)$$

pour laquelle on se restreint à une seule excitation polaritonique. L'Hamiltonien d'interaction comprenant uniquement les termes résonnants (approximation RWA) prend la forme

$$\hat{H}_I = - \sum_{l=1}^{N_e} \hat{\sigma}_{+}^{(l)} \otimes \int_0^{+\infty} d\omega \mathbf{d}^{(l)} \cdot \hat{\mathbf{E}}(\mathbf{r}_l, \omega) + H.c., \quad (2.43)$$

et l'Hamiltonien total est donné par la somme

$$\hat{H} = \hat{H}_C + \hat{H}_{QE} + \hat{H}_I. \quad (2.44)$$

2.2.2 Décomposition modale de l'interaction

À partir de la décomposition modale de la fonction de Green (2.33) et en utilisant les relations (2.17) et (2.43), l'Hamiltonien d'interaction peut se décomposer selon les modes plasmoniques dénotés par l'indice n [64] :

$$H_I = -i\hbar \sum_{l=1}^{N_e} \sum_{n=1}^{+\infty} \hat{\sigma}_{+}^{(l)} \otimes \int_0^{+\infty} d\omega \int d^3r \mathbf{g}_n(\mathbf{r}_l, \mathbf{r}, \omega) \cdot \hat{\mathbf{f}}(\mathbf{r}, \omega), \quad (2.45)$$

où le vecteur $\mathbf{g}_n(\mathbf{r}_l, \mathbf{r}, \omega)$ est défini par

$$\mathbf{g}_n(\mathbf{r}_l, \mathbf{r}, \omega) = \sqrt{\frac{1}{\hbar\pi\varepsilon_0} \frac{\omega^2}{c^2}} \sqrt{\varepsilon_I(\mathbf{r}, \omega)} \mathbf{d}^{(l)} \cdot \bar{\bar{\mathbf{G}}}_n(\mathbf{r}_l, \mathbf{r}, \omega) \quad (2.46)$$

$$= \sqrt{\frac{1}{\hbar\pi\varepsilon_0} \frac{\omega^2}{c^2}} \sqrt{\varepsilon_I(\mathbf{r}, \omega)} \bar{\bar{\mathbf{G}}}_n^T(\mathbf{r}_l, \mathbf{r}, \omega) \cdot \mathbf{d}^{(l)}. \quad (2.47)$$

Pour définir un ensemble d'opérateurs bosoniques associés à chaque mode plasmonique, ceux-ci doivent être définis à partir de vecteurs satisfaisant des conditions d'orthonormalisation vis-à-vis de l'indice harmonique primaire n et en prenant comme définition du produit la relation (2.28). Lorsque le milieu est à symétrie sphérique alors la relation (2.36) est vérifiée et on peut en déduire une relation d'orthogonalité entre les modes :

$$\int d^3r \mathbf{g}_n^*(\mathbf{r}_l, \mathbf{r}, \omega) \cdot \mathbf{g}_{n'}(\mathbf{r}_{l'}, \mathbf{r}, \omega') = 0 \quad \text{pour } n \neq n'. \quad (2.48)$$

Le calcul de la norme des vecteurs $\mathbf{g}_n(\mathbf{r}_l, \mathbf{r}, \omega)$ est nécessaire pour pouvoir les normaliser. Le module carré de cette norme est donné par

$$|\kappa_n(\mathbf{r}_l, \omega)|^2 = \int d^3r \mathbf{g}_n^*(\mathbf{r}_l, \mathbf{r}, \omega) \cdot \mathbf{g}_n(\mathbf{r}_l, \mathbf{r}, \omega). \quad (2.49)$$

En utilisant la relation [43, 45] :

$$\int d^3r \varepsilon_I(\mathbf{r}, \omega) \bar{\bar{\mathbf{G}}}_n^*(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}, \omega) \bar{\bar{\mathbf{G}}}_n(\mathbf{r}, \mathbf{r}_2, \omega) = \frac{c^2}{\omega^2} \Im \left[\bar{\bar{\mathbf{G}}}_n(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, \omega) \right], \quad (2.50)$$

et en sachant que

$$\bar{\bar{\mathbf{G}}}_n^T(\mathbf{r}_2, \mathbf{r}, \omega) = \bar{\bar{\mathbf{G}}}_n(\mathbf{r}, \mathbf{r}_2, \omega), \quad (2.51)$$

nous pouvons montrer que l'expression du module est directement reliée à la décomposition modale de la densité d'état local de l'émetteur l :

$$|\kappa_n(\mathbf{r}_l, \omega)|^2 = \frac{1}{\hbar\pi\varepsilon_0} \frac{\omega^2}{c^2} \mathbf{d}^{(l)} \cdot \Im \left[\bar{\bar{\mathbf{G}}}_n(\mathbf{r}_l, \mathbf{r}_l, \omega) \right] \cdot \left(\mathbf{d}^{(l)} \right)^*. \quad (2.52)$$

À partir de la relation (2.52) nous pouvons définir un ensemble de vecteurs $\mathbf{h}_n(\mathbf{r}_l, \mathbf{r}, \omega)$ satisfaisant la condition d'orthonormalisation suivante

$$\int d^3r \mathbf{h}_n^*(\mathbf{r}_l, \mathbf{r}, \omega) \cdot \mathbf{h}_{n'}(\mathbf{r}_l, \mathbf{r}, \omega) = \delta_{nn'}, \quad (2.53)$$

et qui s'écrivent

$$\mathbf{h}_n(\mathbf{r}_l, \mathbf{r}, \omega) = \mathbf{g}_n(\mathbf{r}_l, \mathbf{r}, \omega) / \kappa_n(\mathbf{r}_l, \omega), \quad (2.54)$$

où la phase de la fonction complexe $\kappa_n(\mathbf{r}_l, \omega)$ est choisie arbitrairement. Nous introduisons finalement les opérateurs bosoniques

$$\hat{a}_n(\mathbf{r}_l, \omega) = \int d^3r \mathbf{h}_n(\mathbf{r}_l, \mathbf{r}, \omega) \cdot \hat{\mathbf{f}}(\mathbf{r}, \omega) \quad (2.55)$$

$$= \int d^3r \sum_{i=1}^3 h_{n,i}(\mathbf{r}_l, \mathbf{r}, \omega) \hat{f}_i(\mathbf{r}, \omega), \quad (2.56)$$

permettant de définir l'excitation ou l'annihilation d'un mode plasmonique quantifié due à la présence d'un émetteur à la position \mathbf{r}_l . La condition d'orthonormalisation sur les vecteurs $\mathbf{h}_n(\mathbf{r}_l, \mathbf{r}, \omega)$ donnée par l'équation (2.53) et les relations de commutations (2.15) et (2.16) sont suffisantes pour que ces opérateurs respectent les relations de commutation usuelles vis-à-vis de l'indice n et de la fréquence ω :

$$\left[\hat{a}_n(\mathbf{r}_l, \omega), \hat{a}_{n'}^\dagger(\mathbf{r}_l, \omega') \right] = \delta_{nn'} \delta(\omega - \omega'). \quad (2.57)$$

$$\left[\hat{a}_n(\mathbf{r}_l, \omega), \hat{a}_{n'}(\mathbf{r}_l, \omega') \right] = 0. \quad (2.58)$$

L'Hamiltonien d'interaction (2.43) s'exprime en fonction de ces opérateurs

$$H_I = -i\hbar \sum_{l=1}^{N_e} \hat{\sigma}_+^{(l)} \otimes \int_0^{+\infty} d\omega \sum_{n=1}^{+\infty} \kappa_n(\mathbf{r}_l, \omega) \hat{a}_n(\mathbf{r}_l, \omega) + H.c \quad (2.59)$$

et montre que chaque émetteur d'indice l se couple avec un ensemble de modes plasmoniques distincts définis par les opérateurs $\hat{a}_n(\mathbf{r}_l, \omega)$ avec n allant de 1 à $+\infty$. Les fonctions $\kappa_n(\mathbf{r}_l, \omega)$ traduisent la forme du couplage entre émetteurs et modes plasmoniques dans le domaine fréquentiel. Nous verrons que dans le cas particulier où les émetteurs se situent à proximité d'une nano-sphère métallique, ces fonctions prennent la forme de résonance lorentzienne que l'on assimilera à des pseudo-modes de cavité discrets.

2.2.3 Interdépendance entre émetteur et orthonormalisation de Löwdin

Si l'on reprend les relations de commutations (2.57) en considérant maintenant deux émetteurs différents d'indice l et l' , on obtient

$$\left[\hat{a}_n(\mathbf{r}_l, \omega), \hat{a}_{n'}^\dagger(\mathbf{r}_{l'}, \omega') \right] = \delta_{nn'} \delta(\omega - \omega') \mu_n^{l,l'}(\omega), \quad (2.60)$$

avec

$$\mu_n^{l,l'}(\omega) = \int d^3r \mathbf{h}_n^*(\mathbf{r}_l, \mathbf{r}, \omega) \cdot \mathbf{h}_n(\mathbf{r}_{l'}, \mathbf{r}, \omega) \quad (2.61)$$

$$= \frac{1}{\hbar\pi\epsilon_0} \frac{\omega^2 \mathbf{d}^{(l)} \cdot \Im \left[\bar{\mathbf{G}}_n(\mathbf{r}_l, \mathbf{r}_{l'}, \omega) \right] \cdot \mathbf{d}^{(l')}}{\kappa_n(\mathbf{r}_l, \omega) \kappa_n^*(\mathbf{r}_{l'}, \omega)}. \quad (2.62)$$

La fonction $\mu_n^{l,l'}(\omega)$ illustre le recouvrement spatial entre les champs plasmoniques associés aux émetteurs l et

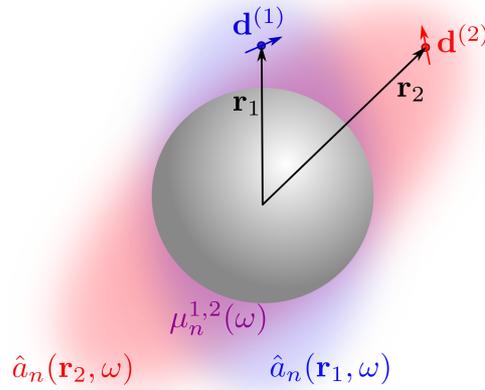


FIGURE 2.3 – Illustration du recouvrement spatial $\mu_n^{1,2}(\omega)$ entre les deux champs plasmoniques résultant de la présence des émetteurs 1 et 2.

l' et peut être directement assimilée à la densité d'états croisée normalisée [65]. Elle peut prendre des valeurs comprises entre -1 et 1 selon la position relative entre les émetteurs. Pour $\mu_n^{l,l'}(\omega) = 0$, les opérateurs $\hat{a}_n(\mathbf{r}_l, \omega)$ et $\hat{a}_n(\mathbf{r}_{l'}, \omega)$ sont orthogonaux et les relations de commutations sont respectées. Cependant pour toutes autres valeurs, les opérateurs bosoniques et les vecteurs de l'espace de Fock qui s'y rattachent ne forment pas une base orthonormale. De plus, ces opérateurs peuvent être linéairement dépendants c'est à dire qu'il sera possible d'exprimer un ou plusieurs de ces opérateurs selon une combinaison linéaire des autres. Si l'on prend le cas particulier pour lequel $|\mu_n^{l,l'}(\omega)| = 1$, nous pouvons multiplier la relation (2.60) par $\mu_n^{l,l'*}(\omega')$ et ainsi écrire

$$\left[\hat{a}_n(\mathbf{r}_l, \omega), \left(\mu_n^{l,l'}(\omega') \hat{a}_{n'}(\mathbf{r}_{l'}, \omega') \right)^\dagger \right] = \delta_{nn'} \delta(\omega - \omega'), \quad (2.63)$$

ce qui nous amène à la relation $\hat{a}_n(\mathbf{r}_l, \omega) = \mu_n^{l,l'}(\omega) \hat{a}_n(\mathbf{r}_{l'}, \omega)$.

Nous devons donc définir un nouvel ensemble d'opérateurs indépendants

$$\left\{ \hat{b}_n^{(1)}(\omega), \hat{b}_n^{(2)}(\omega), \dots, \hat{b}_n^{(N_e)}(\omega) \right\}, \quad (2.64)$$

respectant les relations de commutation suivantes :

$$\left[\hat{b}_n^{(i)}(\omega), \hat{b}_{n'}^{(j)\dagger}(\omega') \right] = \delta_{nn'} \delta(\omega - \omega') \delta_{ij} \quad (2.65)$$

$$\left[\hat{b}_n^{(i)}(\omega), \hat{b}_{n'}^{(j)}(\omega') \right] = 0. \quad (2.66)$$

Pour ce faire nous avons choisi d'appliquer l'orthonormalisation de Löwdin [64, 66] étendue au cas d'opérateur. Celle-ci a pour avantage de considérer simultanément l'ensemble des vecteurs dans la procédure d'orthonormalisation contrairement à une autre orthonormalisation comme celle de Gram-Schmidt. Pour commencer nous définissons l'équivalent du produit scalaire pour deux opérateurs \hat{o}_1 et \hat{o}_2 comme étant le commutateur suivant :

$$((\hat{o}_1, \hat{o}_2)) = [\hat{o}_2, \hat{o}_1^\dagger]. \quad (2.67)$$

La base initialement non-orthonormée du sous-espace associé à un mode n et une fréquence ω peut être définie par le vecteur ligne $\mathbf{A}_n(\omega)$ et sa forme adjointe $\mathbf{A}_n^\dagger(\omega)$

$$\mathbf{A}_n(\omega) = [\hat{a}_n(\mathbf{r}_1, \omega), \hat{a}_n(\mathbf{r}_2, \omega), \dots, \hat{a}_n(\mathbf{r}_{N_e}, \omega)], \quad \mathbf{A}_n^\dagger(\omega) = \begin{bmatrix} \hat{a}_n(\mathbf{r}_1, \omega) \\ \hat{a}_n(\mathbf{r}_2, \omega) \\ \vdots \\ \hat{a}_n(\mathbf{r}_{N_e}, \omega) \end{bmatrix}. \quad (2.68)$$

La métrique $\mathbf{M}_n(\omega)$ de ce sous-espace est définie par le produit tensoriel de ce vecteur avec son adjoint :

$$\begin{aligned} \mathbf{M}_n(\omega) &= \mathbf{A}_n^\dagger(\omega) \otimes \mathbf{A}_n(\omega) \\ &= \begin{pmatrix} ((\hat{a}_n(\mathbf{r}_1, \omega), \hat{a}_n(\mathbf{r}_1, \omega))) & ((\hat{a}_n(\mathbf{r}_1, \omega), \hat{a}_n(\mathbf{r}_2, \omega))) & \cdots & ((\hat{a}_n(\mathbf{r}_1, \omega), \hat{a}_n(\mathbf{r}_{N_e}, \omega))) \\ ((\hat{a}_n(\mathbf{r}_2, \omega), \hat{a}_n(\mathbf{r}_1, \omega))) & ((\hat{a}_n(\mathbf{r}_2, \omega), \hat{a}_n(\mathbf{r}_2, \omega))) & \cdots & ((\hat{a}_n(\mathbf{r}_2, \omega), \hat{a}_n(\mathbf{r}_{N_e}, \omega))) \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ ((\hat{a}_n(\mathbf{r}_{N_e}, \omega), \hat{a}_n(\mathbf{r}_1, \omega))) & ((\hat{a}_n(\mathbf{r}_{N_e}, \omega), \hat{a}_n(\mathbf{r}_2, \omega))) & \cdots & ((\hat{a}_n(\mathbf{r}_{N_e}, \omega), \hat{a}_n(\mathbf{r}_{N_e}, \omega))) \end{pmatrix} \end{aligned} \quad (2.69)$$

et peut s'exprimer directement en fonction des fonctions de recouvrement en utilisant les relations (2.60) et (2.67) :

$$\mathbf{M}_n(\omega) = \begin{pmatrix} 1 & \mu_n^{2,1}(\omega) & \cdots & \mu_n^{N_e,1}(\omega) \\ \mu_n^{1,2}(\omega) & 1 & \cdots & \mu_n^{1,N_e}(\omega) \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ \mu_n^{1,N_e}(\omega) & \mu_n^{2,N_e}(\omega) & \cdots & 1 \end{pmatrix}. \quad (2.71)$$

Cette matrice de recouvrement est hermitienne et peut donc être diagonalisée à l'aide d'une matrice unitaire $\mathbf{T}_n(\omega)$ ainsi

$$\mathbf{T}_n(\omega)^\dagger \mathbf{M}_n(\omega) \mathbf{T}_n(\omega) = \mathbf{D}_n(\omega), \quad (2.72)$$

où la matrice diagonale peut s'écrire sous la forme

$$\mathbf{D}_n(\omega) = \text{diag}(\lambda_n^1(\omega), \lambda_n^2(\omega), \dots, \lambda_n^{N_{ind}}(\omega), 0, \dots, 0) \quad (2.73)$$

Le nombre $N_{ind} (\leq N_e)$ d'opérateur indépendant $\hat{b}_n^{(i)}(\omega)$ permettant de former une base complète est donné par le nombre de valeurs propres non nulles de la matrice $\mathbf{D}_n(\omega)$. Cette nouvelle base orthonormée est définie par le vecteur ligne $\mathbf{B}_n(\omega)$ et sa forme adjointe $\mathbf{B}_n(\omega)$:

$$\mathbf{B}_n(\omega) = [\hat{b}_n^{(1)}(\omega), \hat{b}_n^{(2)}(\omega), \dots, \hat{b}_n^{(N_{ind})}(\omega), 0, \dots, 0], \quad \mathbf{B}_n^\dagger(\omega) = \begin{bmatrix} \hat{b}_n^{(1)}(\omega) \\ \hat{b}_n^{(2)}(\omega) \\ \vdots \\ \hat{b}_n^{(N_{ind})}(\omega) \\ 0 \\ \vdots \\ 0 \end{bmatrix}. \quad (2.74)$$

La procédure d'orthonormalisation de Löwdin permet d'exprimer l'ensemble des opérateurs de la nouvelle base en fonction de la base initiale selon la relation suivante

$$\mathbf{B}_n(\omega) = \mathbf{A}_n(\omega) \mathbf{T}_n(\omega) \mathbf{D}_{-1/2;n}(\omega), \quad (2.75)$$

avec

$$\mathbf{D}_{-1/2;n}(\omega) = \text{diag} \left(\left(\lambda_n^{(1)}(\omega) \right)^{-1/2}, \left(\lambda_n^{(2)}(\omega) \right)^{-1/2}, \dots, \left(\lambda_n^{(N_{ind})}(\omega) \right)^{-1/2}, 0, \dots, 0 \right). \quad (2.76)$$

En développant la relation (2.75) nous obtenons l'expression de chaque opérateur de Löwdin en fonction des originaux :

$$\hat{b}_n^{(j)}(\omega) = \begin{cases} \left(\lambda_n^{(j)}(\omega) \right)^{-1/2} \sum_{i=1}^{N_e} T_n^{(ij)}(\omega) \hat{a}_n(\mathbf{r}_i, \omega) & j \in [1, N_{ind}] \\ 0 & j \in [N_{ind} + 1, N_e]. \end{cases} \quad (2.77)$$

À l'aide de cette relation nous pouvons calculer les relations de commutations associées aux opérateurs $\hat{b}_n^{(j)}(\omega)$ et $\hat{b}_n^{(j)\dagger}(\omega)$ et vérifier les conditions d'orthonormalisation. Après avoir utilisé les relations (2.60), (2.58) et la propriété suivante :

$$\sum_{i=1}^{N_e} \sum_{i'=1}^{N_e} \left(T_n^{(i'j')}(\omega) \right)^* \mu_n^{(i'i)} T_n^{(ij)}(\omega) = \delta_{jj'} \lambda_n^{(j)}(\omega), \quad (2.78)$$

découlant de l'expression (2.72), nous aboutissons aux relations d'orthogonalité (2.65) et (2.66). Les opérateurs originaux peuvent se décomposer sur la base de Löwdin en inversant les relations (2.75) et (2.77). Nous avons :

$$\mathbf{A}_n(\omega) = \mathbf{B}_n(\omega) \mathbf{D}_{1/2;n}(\omega) \mathbf{T}_n^\dagger(\omega), \quad (2.79)$$

ce qui conduit à écrire après développement

$$\hat{a}_n(\mathbf{r}_i, \omega) = \sum_{j=1}^{N_{ind}} \left(\lambda_n^{(j)}(\omega) \right)^{1/2} \left(T_n^{(ij)}(\omega) \right)^* \hat{b}_n^{(j)}(\omega) \quad i \in [1, N_e]. \quad (2.80)$$

Lorsque N_{ind} est égal à N_e alors toutes les valeurs propres de la matrice de recouvrement sont non nulles et les opérateurs $\hat{a}_n(\mathbf{r}_i, \omega)$ sont linéairement indépendants (mais pas obligatoirement orthogonaux). Pour $N_{ind} < N_e$, il existe au moins une valeur propre nulle et la nouvelle base subit une réduction de dimension. À partir de la relation (2.80) nous pouvons maintenant développer l'Hamiltonien d'interaction (2.59) sur la base de Löwdin :

$$H_I = -i\hbar \sum_{l=1}^{N_e} \hat{\sigma}_+^{(l)} \otimes \int_0^{+\infty} d\omega \sum_{n=1}^{+\infty} \sum_{j=1}^{N_{ind}} \kappa_n^{(lj)}(\omega) \hat{b}_n^{(j)}(\omega) + H.c., \quad (2.81)$$

où la nouvelle fonction $\kappa_n^{(lj)}(\omega)$ caractérise le couplage croisé qu'il peut exister entre l'émetteur l et le mode de Löwdin j . Celle-ci s'écrit

$$\kappa_n^{(lj)}(\omega) = \kappa_n(\mathbf{r}_l, \omega) \left(\lambda_n^{(j)}(\omega) \right)^{1/2} \left(T_n^{(lj)}(\omega) \right)^*. \quad (2.82)$$

La prochaine étape va consister à exprimer l'Hamiltonien du champ polaritonique en fonctions des opérateurs $\hat{b}_n^{(j)}(\omega)$ et $\hat{b}_n^{(j)\dagger}(\omega)$ intervenant dans l'Hamiltonien d'interaction.

2.2.4 Élimination des états sombres

L'Hamiltonien du champ polaritonique s'exprime sur la base des opérateurs $\hat{\mathbf{f}}(\mathbf{r}, \omega)$ et $\hat{\mathbf{f}}^\dagger(\mathbf{r}, \omega)$ qui permettent de définir l'espace de Hilbert originel regroupant tous les états de Fock associés à l'ensemble des excitations polaritoniques des plasmons de surfaces localisés. Les opérateurs de Löwdin intervenant dans l'Hamiltonien d'interaction sont construits à partir d'une combinaison linéaire (2.77) des opérateurs $\hat{a}_n(\mathbf{r}_l, \omega)$ qui eux mêmes sont donnés par la projection des opérateurs $\hat{\mathbf{f}}(\mathbf{r}, \omega)$ sur les vecteurs $\mathbf{h}_n(\mathbf{r}_l, \mathbf{r}, \omega)$ (voir (2.55)). L'ensemble des états de Fock, associés aux opérateurs $\hat{b}_n^{(j)}(\omega)$, qui vont se coupler aux émetteurs ne constituent donc qu'un sous-espace de l'espace de Hilbert originel. Nous allons donc montrer par la suite qu'il est possible de diviser l'espace de Hilbert originel en deux sous-espaces distincts et orthogonaux entre eux. Le premier

regroupera les états brillants intervenant dans la dynamique du couplage avec les émetteurs et le second sera un sous-espace sombre pouvant être éliminé. L'Hamiltonien H_C prendra alors la forme :

$$\hat{H}_C = \hat{H}_{C,brillant} + \hat{H}_{C,sombre}, \quad (2.83)$$

où $\hat{H}_{C,brillant}$ et $\hat{H}_{C,sombre}$ sont les Hamiltoniens du champ polaritonique associés aux deux sous-espaces brillant et sombre. Nous montrerons que ceux-ci peuvent s'écrire

$$\hat{H}_{C,brillant} = \int_0^{+\infty} d\omega \hbar\omega \sum_{n=1}^{+\infty} \sum_{j=1}^{N_{ind}} \hat{b}_n^{(j)\dagger}(\omega) \hat{b}_n^{(j)}(\omega), \quad (2.84)$$

et

$$\hat{H}_{C,sombre} = \int_0^{+\infty} d\omega \hbar\omega \int d^3r \hat{\mathbf{s}}^\dagger(\mathbf{r}, \omega) \cdot \hat{\mathbf{s}}(\mathbf{r}, \omega) \quad (2.85)$$

$$= \int_0^{+\infty} d\omega \hbar\omega \int d^3r \sum_{k=1}^3 \hat{s}_k^\dagger(\mathbf{r}, \omega) \hat{s}_k(\mathbf{r}, \omega), \quad (2.86)$$

avec $\hat{s}_k^\dagger(\mathbf{r}, \omega)$ et $\hat{s}_k(\mathbf{r}, \omega)$ les composantes des opérateurs sombres $\hat{\mathbf{s}}^\dagger(\mathbf{r}, \omega)$ et $\hat{\mathbf{s}}(\mathbf{r}, \omega)$. La procédure d'orthonormalisation de Gram-Schmidt va nous permettre de construire ces opérateurs sombres de telle sorte que les états de Fock qui leur sont associés soient orthogonaux aux états de Fock liés aux opérateurs brillants [67, 68]. En retranchant à la composante k de l'opérateur $\hat{\mathbf{f}}(\mathbf{r}, \omega)$ sa projection sur le sous-espace généré par l'ensemble des opérateurs brillants $\hat{b}_n^{(j)}(\omega)$ l'opérateur sombre peut être défini comme :

$$\hat{s}_k(\mathbf{r}, \omega) = \hat{f}_k(\mathbf{r}, \omega) - \sum_{n=1}^{+\infty} \sum_{j=1}^{N_{ind}} \hat{b}_n^{(j)}(\omega) \left[\hat{f}_k(\mathbf{r}, \omega), \hat{b}_n^{(j)\dagger}(\omega) \right]. \quad (2.87)$$

Les opérateurs brillants peuvent être développés sur la base des opérateurs polaritoniques globaux en reprenant la procédure d'orthonormalisation de Löwdin (2.77) et la projection (2.55). On a

$$\hat{b}_n^{(j)}(\omega) = \int dr^3 \mathbf{v}_n^{(j)*}(\mathbf{r}, \omega) \cdot \hat{\mathbf{f}}(\mathbf{r}, \omega), \quad (2.88)$$

$$= \int dr^3 \sum_{k=1}^3 v_{n,k}^{(j)*}(\mathbf{r}, \omega) \hat{f}_k(\mathbf{r}, \omega), \quad (2.89)$$

avec $v_{n,k}^{(j)}(\mathbf{r}, \omega)$ étant la composante k du vecteur

$$\mathbf{v}_n^{(j)}(\mathbf{r}, \omega) = \left(\lambda_n^{(j)} \right)^{-1/2} \sum_{i=1}^{N_e} \left(T_n^{(ij)}(\omega) \right)^* \mathbf{h}_n^*(\mathbf{r}_i, \mathbf{r}, \omega). \quad (2.90)$$

Le calcul de l'expression (2.87) se poursuit en y injectant la décomposition (2.89) pour obtenir finalement :

$$\hat{s}_k(\mathbf{r}, \omega) = \hat{f}_k(\mathbf{r}, \omega) - \sum_{n=1}^{+\infty} \sum_{j=1}^{N_{ind}} \hat{b}_n^{(j)}(\omega) v_{n,k}^{(j)}(\mathbf{r}, \omega), \quad (2.91)$$

Nous pouvons vérifier que les opérateurs $\hat{s}_k(\mathbf{r}, \omega)$ satisfont les relations d'orthogonalités suivantes

$$\left[\hat{b}_n^{(i)\dagger}(\omega), \hat{s}_k(\mathbf{r}, \omega') \right] = 0 \quad \text{et} \quad \left[\hat{b}_n^{(i)}(\omega), \hat{s}_k(\mathbf{r}, \omega') \right] = 0 \quad \forall n, i, k. \quad (2.92)$$

Cela induit que la dynamique résultant du couplage entre les états brillants et les émetteurs est indépendante des états sombres puisque :

$$\left[\hat{H}_{C,brillant}, \hat{H}_{C,sombre} \right] = 0, \quad \left[\hat{H}_I, \hat{H}_{C,sombre} \right] = 0. \quad (2.93)$$

Enfin, nous pouvons exprimer les opérateurs polaritoniques globaux $\hat{f}_k(\mathbf{r}, \omega)$ et $\hat{f}_k^\dagger(\mathbf{r}, \omega)$ comme une somme des opérateurs brillants et sombres à l'aide de l'expression (2.91) et injecter ce résultat dans l'expression de l'Hamiltonien polaritonique \hat{H}_C . On obtient

$$\begin{aligned}
 \hat{H}_C &= \int_0^{+\infty} d\omega \hbar\omega \int d^3r \sum_{k=1}^3 \hat{f}_k^\dagger(\mathbf{r}, \omega) \hat{f}_k(\mathbf{r}, \omega), \\
 &= \int_0^{+\infty} d\omega \hbar\omega \sum_{n, n'=1}^{+\infty} \sum_{j, j'=1}^{N_{ind}} \hat{b}_n^{(j)\dagger}(\omega) \hat{b}_{n'}^{(j')}(\omega) \int d^3r \mathbf{v}_n^{(j)*}(\mathbf{r}, \omega) \cdot \mathbf{v}_{n'}^{(j')}(\mathbf{r}, \omega) \\
 &\quad + \int_0^{+\infty} d\omega \hbar\omega \int d^3r \hat{\mathbf{s}}^\dagger(\mathbf{r}, \omega) \cdot \hat{\mathbf{s}}(\mathbf{r}, \omega) \\
 &\quad + \int_0^{+\infty} d\omega \hbar\omega \sum_{n=1}^{+\infty} \sum_{j=1}^{N_e} \hat{b}_n^{(j)}(\omega) \int d^3r \sum_{k=1}^3 \hat{s}_k^\dagger(\mathbf{r}, \omega) v_{n,k}^{(j)}(\mathbf{r}, \omega) \\
 &\quad + \int_0^{+\infty} d\omega \hbar\omega \sum_{n=1}^{+\infty} \sum_{j=1}^{N_e} \hat{b}_n^{(j)\dagger}(\omega) \int d^3r \sum_{k=1}^3 \hat{s}_k(\mathbf{r}, \omega) v_{n,k}^{(j)*}(\mathbf{r}, \omega).
 \end{aligned} \tag{2.94}$$

$$\tag{2.95}$$

Les conditions d'orthonormalisation sur les fonctions $\mathbf{h}_n(\mathbf{r}_i, \mathbf{r}, \omega)$ et la propriété de diagonalisation (2.78) nous amènent à démontrer la relation suivante :

$$\int d^3r \mathbf{v}_n^{(j)*}(\mathbf{r}, \omega) \cdot \mathbf{v}_{n'}^{(j')}(\mathbf{r}, \omega) = \delta_{nn'} \delta_{jj'}, \tag{2.96}$$

qui va nous permettre de simplifier le premier terme de la somme (2.95). En injectant l'expression des opérateurs sombres (2.91) dans les troisième et quatrième termes de cette même somme et en tenant compte de la décomposition des opérateurs brillants (2.89), nous pouvons montrer que ces termes non-diagonaux s'annulent. Nous retrouvons alors la décomposition anticipée (2.83) à laquelle nous pouvons enlever la partie relative au sous-espace sombre pour trouver l'expression simplifiée suivante :

$$\hat{H}_C = \int_0^{+\infty} d\omega \hbar\omega \sum_{n=1}^{+\infty} \sum_{j=1}^{N_{ind}} \hat{b}_n^{(j)\dagger}(\omega) \hat{b}_n^{(j)}(\omega). \tag{2.97}$$

En reprenant ce dernier résultat et celui de la sous-section 2.2.3, nous pouvons définir la forme de l'Hamiltonien effectif continu :

$$\boxed{
 \begin{aligned}
 \hat{H}_{eff} &= \sum_{l=1}^{N_e} \hbar\omega_0 \hat{\sigma}_+^{(l)} \hat{\sigma}_-^{(l)} + \sum_{n=1}^{+\infty} \sum_{j=1}^{N_{ind}} \int_0^{+\infty} d\omega \hbar\omega \hat{b}_n^{(j)\dagger}(\omega) \hat{b}_n^{(j)}(\omega) \\
 &\quad - i\hbar \sum_{l=1}^{N_e} \sum_{n=1}^{+\infty} \sum_{j=1}^{N_{ind}} \int_0^{+\infty} d\omega \left(\kappa_n^{(lj)}(\omega) \hat{\sigma}_+^{(l)} \hat{b}_n^{(j)}(\omega) - \kappa_n^{(lj)*}(\omega) \hat{b}_n^{(j)\dagger}(\omega) \hat{\sigma}_-^{(l)} \right),
 \end{aligned} \tag{2.98}$$

pour lequel on reconnaît les trois différents termes :

- énergies des niveaux atomiques
- énergie des plasmons
- couplage émetteurs-plasmons.

2.3 Modèle effectif discret

Cette section constitue la dernière étape de la construction d'un modèle effectif discret. Dans la section 2.2.2, nous avons pu simplifier le modèle originel en définissant des opérateurs bosoniques indépendants des variables spatiales par intégration de ces dernières (voir équation (2.55)). Ceci nous a permis de définir un modèle effectif continu en fréquence (2.98) permettant de décrire l'interaction d'un ensemble d'émetteurs avec

les modes d'une nano-structure sphérique. Nous allons voir ici que le modèle peut être simplifié à nouveau en intégrant les opérateurs $\hat{b}_n^{(i)}(\omega)$ sur le domaine fréquentiel cette fois-ci. L'Hamiltonien d'interaction s'exprimera alors selon un ensemble d'opérateurs relatif à des modes discrétisés. Cependant, du fait que les valeurs propres de l'Hamiltonien \hat{H}_C (2.97) sont celles que l'on souhaite intégrer, l'élimination des états sombres qui a permis d'éliminer la variable d'espace (voir (2.83)-(2.86)) ne sera pas réalisable pour la fréquence. Nous allons devoir appliquer l'Hamiltonien continu sur la fonction d'onde du système et intégrer le continuum directement sur les équations régissant la dynamique des amplitudes de probabilité. Cette nouvelle démarche s'avère être compliquée à appliquer directement sur un ensemble N_e d'émetteur. Nous commencerons par la détailler pour un émetteur unique puis nous étendrons le raisonnement au cas d'émetteurs multiples.

2.3.1 Émetteur unique

Pour un système composé d'un émetteur repéré par le vecteur position \mathbf{r}_d et en interaction avec la nano-sphère, l'Hamiltonien effectif continu (2.98) s'écrit

$$\begin{aligned} \hat{H}_{eff} = & \hbar\omega_0\hat{\sigma}_+\hat{\sigma}_- + \sum_{n=1}^{+\infty} \int_0^{+\infty} d\omega \hbar\omega \hat{b}_n^\dagger(\omega) \hat{b}_n(\omega) \\ & - i\hbar \sum_{n=1}^{+\infty} \int_0^{+\infty} d\omega \left(\kappa_n(\mathbf{r}_d, \omega) \hat{\sigma}_+ \hat{b}_n(\omega) - \kappa_n^*(\mathbf{r}_d, \omega) \hat{b}_n^\dagger(\omega) \hat{\sigma}_- \right), \end{aligned} \quad (2.99)$$

où $\hat{b}_n(\omega) = \hat{a}_n(\mathbf{r}_d, \omega)$. Comme mentionné précédemment, la procédure de discrétisation doit se faire sur les amplitudes de probabilité de la fonction d'onde du fait qu'il n'est pas possible d'effectuer une séparation des états brillants et sombres du second terme de la somme (2.99). La fonction d'onde sera développée dans le sous-espace à une excitation de l'espace produit tensoriel $(|e\rangle, |g\rangle) \otimes (|\mathbf{0}\rangle, |1_n(\omega)\rangle)$ où l'excitation du mode plasmonique à la fréquence ω est définie par

$$|1_n(\omega)\rangle = \hat{b}_n^\dagger(\omega)|\mathbf{0}\rangle. \quad (2.100)$$

En représentation d'interaction cette fonction d'onde prend la forme

$$|\psi(t)\rangle = C_{e,\mathbf{0}}(t) e^{-i\omega_0 t} |e, \mathbf{0}\rangle + \sum_{n=1}^{+\infty} \int_0^{+\infty} d\omega C_{g,1}^n(\omega, t) e^{-i\omega t} |g, 1_n(\omega)\rangle, \quad (2.101)$$

et se décompose sur deux états dont l'excitation unique se répartie soit sur l'émetteur, soit sur le champ plasmonique. L'équation de Schrödinger

$$i\hbar \frac{d}{dt} |\psi(t)\rangle = \hat{H}_{eff} |\psi(t)\rangle \quad (2.102)$$

nous permet d'écrire les équations de la dynamique des amplitudes de probabilités :

$$\dot{C}_{e,\mathbf{0}}(t) = - \sum_{n=1}^{+\infty} \int_0^{+\infty} d\omega \kappa_n(\mathbf{r}_d, \omega) e^{-i(\omega-\omega_0)t} C_{g,1}^n(\omega, t) \quad (2.103)$$

$$\dot{C}_{g,1}^n(\omega, t) = \kappa_n^*(\mathbf{r}_d, \omega) e^{i(\omega-\omega_0)t} C_{e,\mathbf{0}}(t). \quad (2.104)$$

Afin que la discrétisation sur le domaine fréquentiel soit menée à bien, nous tirons bénéfice de la forme des fonctions de couplage entre l'émetteur et le continuum qui se caractérise par un profil lorentzien (voir figure 2.4). Chaque fonction de couplage va alors pouvoir s'écrire

$$\kappa_n(\mathbf{r}_d, \omega) = ig_n(\mathbf{r}_d) L_n(\omega) = \sqrt{\frac{\gamma_n}{2\pi}} \frac{ig_n(\mathbf{r}_d)}{\omega - \omega_n + i\frac{\gamma_n}{2}}, \quad (2.105)$$

avec

$$L_n(\omega) = \sqrt{\frac{\gamma_n}{2\pi}} \frac{1}{\omega - \omega_n + i\frac{\gamma_n}{2}}, \quad (2.106)$$

où chaque mode plasmonique n est vu comme un pseudo-mode défini par une fréquence de résonance ω_n , des pertes γ_n et un couplage à l'émetteur g_n . Nous choisissons ces trois paramètres réels. Les fonctions $L_n(\omega)$ sont normalisées de telle sorte que :

$$\int_{-\infty}^{+\infty} d\omega |L_n(\omega)|^2 = 1. \quad (2.107)$$

La figure 2.4 nous montre la décomposition modale de la densité d'états locale définie par (2.52) pour un émetteur situé à 2 nm et 6 nm de la surface d'une sphère en argent de rayon 8 nm. La permittivité du métal est modélisée à l'aide des paramètres de Drude suivants : $\hbar\omega_p = 7.9$ eV, $\varepsilon_\infty = 6$ et $\hbar\gamma_e = 51$ meV. La permittivité du milieu diélectrique environnant l'émetteur et la structure plasmonique est donnée par $\varepsilon_b = 1$. Nous voyons que chacune des résonances des modes plasmoniques est bien caractérisée par un profil lorentzien. Cette forme particulière est valable dans un certain domaine d'étude défini par les deux conditions suivantes :

- Le rayon de la sphère R doit être petit devant les longueurs d'ondes impliquées (approximation quasi-statique). On peut alors montrer que les coefficients de Mie A_M^{fs} , B_M^{fs} , A_N^{fs} , B_N^{fs} , intervenant dans l'expression du tenseur de Green diffusé (2.192), dépendent de le développement modal de la polarisabilité quasi-statique. Cette dernière révèle le profil lorentzien des résonances plasmoniques en considérant que la permittivité métallique est définie par le modèle de Drude [69].
- L'émetteur doit se situer dans le domaine de champ proche de la nano-particule, c'est à dire lorsque $k_b r_d \ll 1$ avec r_d étant le module du vecteur position \mathbf{r}_d . Dans ces conditions, la partie diffusée du tenseur de Green $\bar{\bar{\mathbf{G}}}_S$ est dominante devant la contribution du vide $\bar{\bar{\mathbf{G}}}_0$ et nous pourrons négliger cette dernière. De plus, on pourra alors considérer que les profils de résonances donnés par les coefficients de Mie ne seront pas déformés par la contribution des fonctions d'ondes sphériques vectorielles $\mathbf{M}_{nmp}^{(1)}(\mathbf{r}_d, k_b)$ et $\mathbf{N}_{nmp}^{(1)}(\mathbf{r}_d, k_b)$. En effet, la période d'oscillation selon la fréquence ω des fonctions de Bessel ou de Hankel intervenant dans les expressions (2.25) et (2.26) sera bien trop grande devant la largeur γ_n des fonctions lorentziennes.

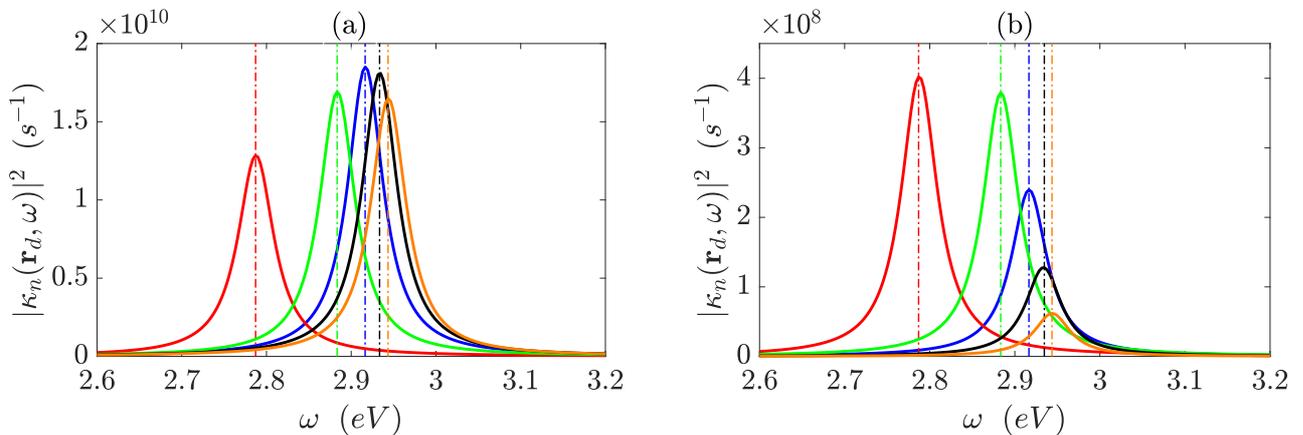


FIGURE 2.4 – Représentation graphique des fonctions de couplages pour les cinq premiers modes plasmoniques d'une nano-particule métallique de rayon $R = 8$ nm (rouge : dipolaire, vert : quadripolaire, bleu : hexapolaire, ...). En (a), l'émetteur est situé à 2 nm de la surface de la sphère et le moment dipolaire est orienté radialement. En (b), l'émetteur est situé à 6 nm de la surface de la sphère et le moment dipolaire est tangent à celle-ci. Dans les deux cas, la valeur du moment dipolaire est de 1 debye. Les lignes en tirets pointillés indiquent les fréquences de résonances des modes.

Pour chaque indice n , nous définissons maintenant les amplitudes de probabilité intégrées suivantes

$$C_{g,1}^n(t) = \int_0^{+\infty} d\omega L_n(\omega) e^{-i(\omega-\omega_0)t} C_{g,1}^n(\omega, t). \quad (2.108)$$

Nous voyons tout de suite que la première équation différentielle (2.103) peut s'écrire simplement

$$\dot{C}_{e,\mathbf{0}}(t) = - \sum_{n=1}^{+\infty} i g_n(\mathbf{r}_d) C_{g,1}^n(t). \quad (2.109)$$

Après dérivation formelle des amplitudes (2.108) par rapport au temps, nous pouvons utiliser la relation (2.104) et sa forme intégrée sur le temps pour obtenir l'expression suivante

$$\begin{aligned} \dot{C}_{g,1}^n(t) = & \dot{C}_{g,1}^{n,0}(t) - i g_n(\mathbf{r}_d) \int_0^{+\infty} d\omega |L_n(\omega)|^2 C_{e,\mathbf{0}}(t) \\ & - g_n(\mathbf{r}_d) \int_0^t dt' C_{e,\mathbf{0}}(t') \int_0^{+\infty} d\omega (\omega - \omega_0) |L_n(\omega)|^2 e^{-i(\omega - \omega_0)(t-t')}, \end{aligned} \quad (2.110)$$

où

$$C_{g,1}^{n,0}(t) = \int_0^{+\infty} d\omega L_n(\omega) e^{-i(\omega - \omega_0)t} C_{g,1}^n(\omega, 0) \quad (2.111)$$

représente la forme intégrée de l'amplitude de probabilité initiale. Pour évaluer l'intégrale sur ω intervenant dans le troisième terme de l'équation (2.110) nous procédons en deux étapes. En premier lieu nous considérons que les fonctions $L_n(\omega)$ prennent des valeurs non nulles uniquement autour des fréquences de résonances ω_n ce qui nous autorise à étendre le domaine d'intégration de $-\infty$ à $+\infty$. Ceci permet ensuite d'appliquer le théorème des résidus en définissant un contour d'intégration dans le demi-plan complexe inférieur comprenant un unique résidu $a_{-1} = \omega_n - i\frac{\gamma_n}{2}$. En prenant garde que l'intégrale sur le contour définie dans le plan complexe s'annule lorsque l'on prend la limite en l'infini des bornes d'intégration, on trouve que

$$\int_{-\infty}^{+\infty} d\omega \frac{\gamma_n}{2\pi} \frac{\omega - \omega_0}{(\omega - \omega_n)^2 + (\frac{\gamma_n}{2})^2} e^{-i(\omega - \omega_0)(t-t')} = \left(\delta_n - i\frac{\gamma_n}{2} \right) e^{-i(\delta_n - i\frac{\gamma_n}{2})(t-t')}, \quad (2.112)$$

avec l'écart à la résonance $\delta_n = \omega_n - \omega_0$. L'expression (2.110) s'écrit alors

$$\dot{C}_{g,1}^n(t) = \dot{C}_{g,1}^{n,0}(t) - i g_n(\mathbf{r}_d) C_{e,\mathbf{0}}(t) - g_n(\mathbf{r}_d) \left(\delta_n - i\frac{\gamma_n}{2} \right) \int_0^t dt' C_{e,\mathbf{0}}(t') e^{-i(\delta_n - i\frac{\gamma_n}{2})(t-t')}. \quad (2.113)$$

En injectant la forme intégrée de l'expression (2.104) dans la définition (2.108), nous pouvons déduire la relation suivante :

$$C_{g,1}^n(t) - C_{g,1}^{n,0}(t) = -i g_n(\mathbf{r}_d) \int_0^t dt' C_{e,\mathbf{0}}(t') \int_0^{+\infty} d\omega |L_n(\omega)|^2 e^{-i(\omega - \omega_0)(t-t')}, \quad (2.114)$$

où l'intégrale sur ω peut être évaluée de la même manière que pour la relation (2.112). Nous trouvons alors l'expression

$$C_{g,1}^n(t) - C_{g,1}^{n,0}(t) = -i g_n(\mathbf{r}_d) \int_0^t dt' C_{e,\mathbf{0}}(t') e^{-i(\delta_n - i\frac{\gamma_n}{2})(t-t')}, \quad (2.115)$$

qu'il est possible d'utiliser pour simplifier le dernier terme de droite dans l'équation (2.113). L'équation différentielle de $C_{g,1}^n(t)$ devient

$$\dot{C}_{g,1}^n(t) = \dot{C}_{g,1}^{n,0}(t) - i g_n(\mathbf{r}_d) C_{e,\mathbf{0}}(t) - i \left(\delta_n - i\frac{\gamma_n}{2} \right) \left(C_{g,1}^n(t) - C_{g,1}^{n,0}(t) \right). \quad (2.116)$$

Lorsque l'on prend comme condition initiale pour la fonction d'onde

$$|\psi(0)\rangle = |e, \mathbf{0}\rangle, \quad (2.117)$$

alors les termes $\dot{C}_{g,1}^{n,0}(t)$ et $C_{g,1}^{n,0}(t)$ présents dans (2.116) s'annulent et nous obtenons le système d'équation différentielle suivant

$$\dot{C}_{e,\mathbf{0}}(t) = - \sum_{n=1}^{+\infty} i g_n(\mathbf{r}_d) C_{g,1}^n(t) \quad (2.118)$$

$$\dot{C}_{g,1}^n(t) = -i g_n(\mathbf{r}_d) C_{e,\mathbf{0}}(t) - i \left(\delta_n - i\frac{\gamma_n}{2} \right) C_{g,1}^n(t). \quad (2.119)$$

L'intégration selon la fréquence angulaire ω fait apparaître un couplage g_n entre l'émetteur et des pseudo-modes discrets associés à chaque mode plasmonique de la particule métallique. Pour une fonction d'onde discrétisée s'écrivant

$$|\psi(t)\rangle = C_{e,0}(t)|e, \mathbf{0}\rangle + \sum_{n=1}^{+\infty} C_{g,1}^n(t)|g, 1_n\rangle, \quad (2.120)$$

les équations différentielles couplées (2.118) et (2.119) correspondent à l'équation de Schrödinger

$$i\hbar \frac{d}{dt} |\psi(t)\rangle = \hat{H}_{eff}^{(d)} |\psi(t)\rangle, \quad (2.121)$$

où l'Hamiltonien effectif discrétisé prend la forme matricielle suivante

$$\hat{H}_{eff}^{(d)} = \hbar \begin{pmatrix} 0 & g_1(\mathbf{r}_d) & g_2(\mathbf{r}_d) & \cdots & g_N(\mathbf{r}_d) \\ g_1(\mathbf{r}_d) & \delta_1 - i\frac{\gamma_1}{2} & 0 & \cdots & 0 \\ g_2(\mathbf{r}_d) & 0 & \delta_2 - i\frac{\gamma_2}{2} & \cdots & \vdots \\ \vdots & \vdots & \cdots & \ddots & 0 \\ g_N(\mathbf{r}_d) & 0 & \cdots & 0 & \delta_N - i\frac{\gamma_N}{2} \end{pmatrix}, \quad (2.122)$$

avec N le nombre de mode plasmonique prise en compte pour assurer la convergence. Cet Hamiltonien peut aussi s'exprimer selon les opérateurs du système ainsi

$$\hat{H}_{eff}^{(d)} = \sum_{n=1}^{+\infty} \hbar \left(\delta_n - i\frac{\gamma_n}{2} \right) \hat{b}_n^\dagger \hat{b}_n + \hbar \sum_{n=1}^{+\infty} \left(g_n(\mathbf{r}_d) \hat{\sigma}_+ \hat{b}_n + g_n(\mathbf{r}_d) \hat{b}_n^\dagger \hat{\sigma}_- \right), \quad (2.123)$$

où les opérateurs bosoniques \hat{b}_n résultent bien de l'intégration des opérateurs continus $\hat{b}_n(\omega)$:

$$\hat{b}_n = \int_0^{+\infty} d\omega L_n(\omega) \hat{b}_n(\omega), \quad (2.124)$$

et respectent les relations de commutations usuelles

$$[\hat{b}_n, \hat{b}_{n'}^\dagger] = \delta_{nn'} \quad (2.125)$$

$$[\hat{b}_n, \hat{b}_{n'}] = [\hat{b}_n^\dagger, \hat{b}_{n'}^\dagger] = 0. \quad (2.126)$$

La référence d'énergie de l'Hamiltonien discret (2.123) peut être changée sans affecter la dynamique du système en appliquant la transformation unitaire suivante

$$\hat{H}_{eff}^{(d)} = \hat{\mathcal{R}}^\dagger(t) \hat{H}_{eff}^{(d)} \hat{\mathcal{R}}(t) - i\hbar \hat{\mathcal{R}}^\dagger(t) \frac{\partial \hat{\mathcal{R}}(t)}{\partial t}, \quad (2.127)$$

avec

$$\hat{\mathcal{R}}(t) = e^{i\omega_0 t} \hat{\mathbf{1}} = e^{i\omega_0 t} \left(\hat{\sigma}_+ \hat{\sigma}_- + \sum_{n=1}^{+\infty} \hat{b}_n^\dagger \hat{b}_n \right). \quad (2.128)$$

L'Hamiltonien effectif discrétisé prend la forme

$$\hat{H}_{eff}^{(d)} = \hbar \omega_0 \hat{\sigma}_+ \hat{\sigma}_- + \sum_{n=1}^{+\infty} \hbar \left(\omega_n - i\frac{\gamma_n}{2} \right) \hat{b}_n^\dagger \hat{b}_n + \hbar \sum_{n=1}^{+\infty} \left(g_n(\mathbf{r}_d) \hat{\sigma}_+ \hat{b}_n + g_n(\mathbf{r}_d) \hat{b}_n^\dagger \hat{\sigma}_- \right). \quad (2.129)$$

Les termes imaginaires apparaissant sur la diagonale de cet Hamiltonien proviennent du calcul de l'intégrale (2.112) pour lequel le domaine d'intégration du continuum à été prolongé dans le plan complexe. La perte d'information relative à la distribution d'énergie sur le continuum due à l'intégration des opérateurs $\hat{b}_n(\omega)$ est représentée par des termes de perte γ_n . Cela se traduit dans la dynamique par une fuite des populations des pseudo-modes plasmoniques en dehors de l'espace de Hilbert sur lequel repose l'Hamiltonien effectif discret du fait que celui-ci est non-hermitien. La figure 2.5 représente schématiquement le passage du modèle continu (2.98) au modèle discret (2.129). La forme de l'Hamiltonien effectif obtenu présente une signification physique claire : l'émetteur est couplé aux différents modes plasmons avec une constante g_n . Ces modes présentent des pertes γ_n par absorption dans le métal et fuites radiatives.

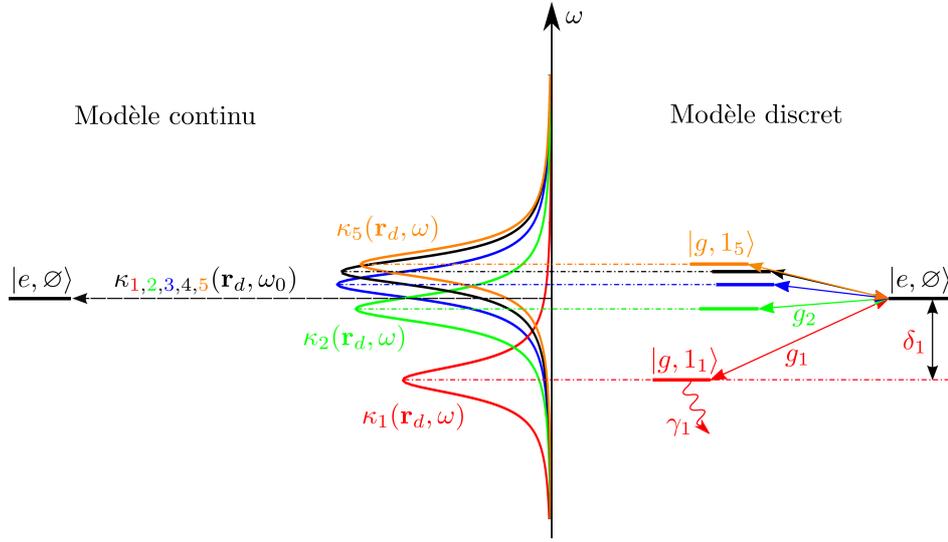


FIGURE 2.5 – Discretisation de l'interaction émetteur/nanoparticule à partir de la décomposition modale de la densité d'état locale.

2.3.2 Plusieurs émetteurs

La procédure utilisée dans la sous-section précédente peut être étendue au cas de plusieurs émetteurs se situant dans le domaine de champ proche de la nanoparticule, c'est-à-dire lorsque $k_b r_l \ll 1$ avec r_l étant le module du vecteur position de l'émetteur l . Dans ces conditions, nous faisons l'hypothèse que le produit scalaire des vecteurs $\mathbf{g}_n(\mathbf{r}_l, \mathbf{r}, \omega)$ et $\mathbf{g}_n(\mathbf{r}_{l'}, \mathbf{r}, \omega)$, donné par

$$\begin{aligned} \Omega_n(\mathbf{r}_l, \mathbf{r}_{l'}, \omega) &= \int d^3 r \mathbf{g}_n^*(\mathbf{r}_l, \mathbf{r}, \omega) \cdot \mathbf{g}_n(\mathbf{r}_{l'}, \mathbf{r}, \omega) \\ &= \frac{1}{\hbar \pi \epsilon_0} \frac{\omega^2}{c^2} \mathbf{d}^{(l)} \cdot \Im \left[\bar{\bar{\mathbf{G}}}_n(\mathbf{r}_l, \mathbf{r}_{l'}, \omega) \right] \cdot \left(\mathbf{d}^{(l')} \right)^*, \end{aligned} \quad (2.130)$$

peut être caractérisé par le même profil lorentzien $|L_n(\omega)|^2$ que la norme $|\kappa(\mathbf{r}_l, \omega)|^2$. La fonction de recouvrement, définie par (2.62), peut alors être considérée comme constante sur le domaine de fréquence des profils lorentziens de chaque mode plasmonique et nous pouvons en déduire l'expression

$$\Omega_n(\mathbf{r}_l, \mathbf{r}_{l'}, \omega) \approx g_n(\mathbf{r}_l) g_n(\mathbf{r}_{l'}) \mu_n^{l,l'} |L_n(\omega)|^2, \quad (2.131)$$

où $\mu_n^{l,l'} = \mu_n^{l,l'}(\omega_n)$. Nous vérifions sur la figure 2.6 que l'approximation (2.131) est valable. De ce fait, les valeurs propres et les composantes des vecteurs propres de la matrice de recouvrement sont indépendantes de ω . D'après la relation (2.82) nous en déduisons que les couplages $\kappa_n^{(lj)}(\omega)$ sont caractérisés par des profils lorentziens, tout comme les fonctions $\kappa_n(\mathbf{r}_l, \omega)$. On a

$$\kappa_n^{(lj)}(\omega) = i g_n^{(lj)} L_n(\omega) \quad (2.132)$$

avec

$$g_n^{(lj)} = g_n(\mathbf{r}_l) \left(\lambda_n^{(j)} \right)^{1/2} \left(T_n^{(lj)} \right)^*. \quad (2.133)$$

Les valeurs propres $\lambda_n^{(j)}$ et les composantes de la matrice de passage $T_n^{(lj)}$ découlent de la diagonalisation de la matrice de recouvrement $\mathbf{M}_n(\omega_n)$. À partir de ces nouvelles fonctions de couplages, nous pouvons discrétiser l'Hamiltonien (2.98) et obtenir la forme suivante

$$\begin{aligned} \hat{H}_{eff}^{(d)} &= \sum_{l=1}^{N_e} \hbar \omega_0 \hat{\sigma}_+^{(l)} \hat{\sigma}_-^{(l)} + \sum_{n=1}^{+\infty} \sum_{j=1}^{N_{ind}} \hbar \left(\omega_n - i \frac{\gamma_n}{2} \right) \hat{b}_n^{(j)\dagger} \hat{b}_n^{(j)} \\ &\quad + \hbar \sum_{l=1}^{N_e} \sum_{n=1}^{+\infty} \sum_{j=1}^{N_{ind}} \left(g_n^{(lj)} \hat{\sigma}_+^{(l)} \hat{b}_n^{(j)} + \left(g_n^{(lj)} \right)^* \hat{b}_n^{(j)\dagger} \hat{\sigma}_-^{(l)} \right), \end{aligned} \quad (2.134)$$

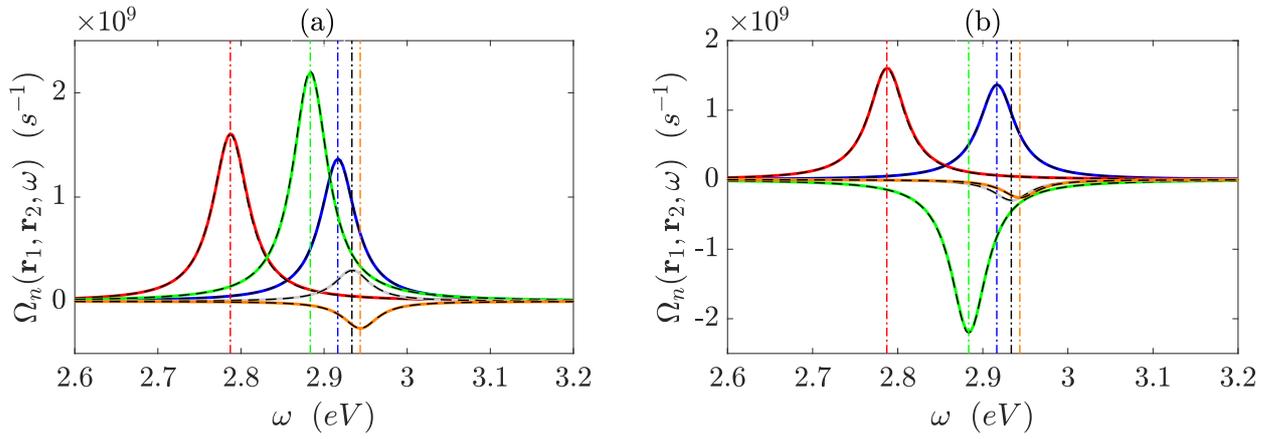


FIGURE 2.6 – Représentation graphique des fonctions $\Omega_n(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, \omega)$ pour les cinq premiers modes plasmoniques d’une nano-particule de rayon $R = 8$ nm. L’émetteur 1 est situé à 2 nm et son moment dipolaire est orienté radialement alors que l’émetteur 2 est situé à 6 nm et son moment dipolaire est tangent à la surface de la sphère. La valeur de ces moments dipolaires est de 1 debye. En (a) l’angle entre les deux vecteurs position \mathbf{r}_1 et \mathbf{r}_2 est de $\pi/4$ alors qu’en (b) il est de $3\pi/4$. Les courbes en trait continu coloré sont obtenues en prenant la formule exacte (2.130). Les courbes en traits pointillés noirs correspondent à la forme approchée (2.131).

faisant intervenir les opérateurs bosoniques

$$\hat{b}_n^{(j)} = \int_0^{+\infty} d\omega L_n(\omega) \hat{b}_n^{(j)}(\omega), \quad (2.135)$$

qui respectent les relations de commutations suivantes

$$\left[\hat{b}_n^{(i)}, \hat{b}_{n'}^{(j)\dagger} \right] = \delta_{nn'} \delta_{ij} \quad (2.136)$$

$$\left[\hat{b}_n^{(i)}, \hat{b}_{n'}^{(j)} \right] = \left[\hat{b}_n^{(i)\dagger}, \hat{b}_{n'}^{(j)\dagger} \right] = 0. \quad (2.137)$$

2.4 Équation maîtresse pour la plasmonique quantique

La description du processus de relaxation des pseudo-modes plasmoniques que nous pouvons faire à l’aide de l’équation de Schrödinger (2.118) et (2.119) peut s’avérer être incomplète. Ce processus est incohérent et peut donc provoquer une brisure de la superposition au sein du système. De manière générale, la fonction d’onde est associée à un état pur et ne peut plus être définie lors de cette brisure. Afin de pouvoir décrire le mélange statistique d’état qui peut survenir après la relaxation incohérente, nous devons plutôt travailler sur la matrice densité et construire un super opérateur de dissipation s’ajoutant à l’équation de Liouville-Von Neumann pour former l’équation maîtresse (ou équation de Lindblad) permettant de déterminer l’évolution du système. Nous commencerons en proposant une forme équivalente de l’Hamiltonien effectif dans lequel les modes plasmoniques seront définis comme des quasi-modes couplés à un ensemble de réservoirs. Puis nous en déduirons la forme Lindbladienne de l’équation maîtresse qui s’y rattache. Enfin nous montrerons comment ce modèle peut être utilisé pour décrire l’asymétrie des profils de Fano des résonances plasmoniques en présence de pertes radiatives importantes.

2.4.1 Pseudo-modes et Quasi-modes

La discrétisation du réservoir polaritonique structuré établie dans la section 2.3 a mis en évidence un ensemble de pseudo-modes plasmoniques dont la dynamique est décrite par une équation de Schrödinger. Les pertes de ces pseudo-modes prennent la forme de termes non-hermitiens dans le modèle discret et induisent une fuite des populations en dehors de l’espace de Hilbert sur lequel repose l’Hamiltonien effectif discrétisé. Ces termes de fuites correspondent à la population des états formant le mélange statistique qu’il est impossible

de décrire à l'aide de la fonction d'onde. Cependant, si l'on considère maintenant que les pseudo-modes responsables de la structuration du réservoir polaritonique peuvent être remplacés de façon équivalente par des quasi-modes alors la relaxation de l'excitation plasmonique sera décrite par un couplage à un ensemble de réservoirs plats et le système pourra être entièrement caractérisé par la fonction d'onde. En électrodynamique

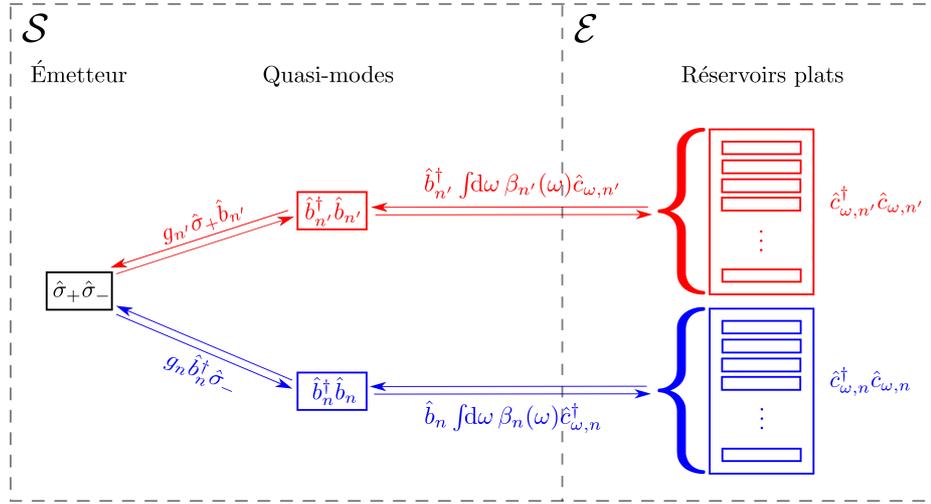


FIGURE 2.7 – Schéma d'interaction entre un émetteur et deux quasi-modes plasmoniques n et n' .

quantique en cavité, ces réservoirs constituent l'environnement avec lequel l'excitation photonique d'un mode de cavité se couple par l'intermédiaire des miroirs imparfaits induisant les pertes du mode de cavité. Le couplage à cet environnement doit être suffisamment plat pour induire une relaxation irréversible. Sur cette base, nous distinguons l'espace de Hilbert \mathcal{S} du système associé à l'interaction des émetteurs et de la nanoparticule et l'espace \mathcal{E} de l'environnement constitué d'un ensemble de bains d'oscillateurs se couplant de manière markovienne aux modes plasmoniques comme illustré sur la figure 2.7. L'Hamiltonien total est défini dans l'espace produit tensoriel $\mathcal{S} \oplus \mathcal{E}$ et s'écrit

$$\hat{H}_{SE} = \hat{H}_S + \hat{H}_E + \hat{H}_{SE}^{(I)}, \quad (2.138)$$

$$\hat{H}_S = \sum_{l=1}^{N_e} \hbar \omega_0 \hat{\sigma}_+^{(l)} \hat{\sigma}_-^{(l)} + \sum_{n=1}^{+\infty} \hbar \omega_n \sum_{j=1}^{N_{ind}} \hat{b}_n^{(j)\dagger} \hat{b}_n^{(j)} + \hbar \sum_{l=1}^{N_e} \sum_{n=1}^{+\infty} \sum_{j=1}^{N_{ind}} \left(g_n^{(lj)} \hat{\sigma}_+^{(l)} \hat{b}_n^{(j)} + \left(g_n^{(lj)} \right)^* \hat{b}_n^{(j)\dagger} \hat{\sigma}_-^{(l)} \right), \quad (2.139)$$

$$\hat{H}_E = \int d\omega \hbar \omega \sum_{n=1}^{+\infty} \sum_{j=1}^{N_{ind}} \hat{c}_{\omega,n}^{(j)\dagger} \hat{c}_{\omega,n}^{(j)}, \quad (2.140)$$

$$\hat{H}_{SE}^{(I)} = i\hbar \int d\omega \sum_{n=1}^{+\infty} \sum_{j=1}^{N_{ind}} \beta_n^{(j)}(\omega) \left(\hat{c}_{\omega,n}^{(j)\dagger} \hat{b}_n^{(j)} - \hat{b}_n^{(j)\dagger} \hat{c}_{\omega,n}^{(j)} \right). \quad (2.141)$$

L'Hamiltonien système dérive directement de la formule (2.134) pour lequel les termes non hermitiens de pertes ont été remplacés par un bain (réservoir plat) de quasi-modes et son couplage au système. Plus précisément pour chaque opérateur de Löwdin $\hat{b}_n^{(j)}$ nous définissons un continuum de fréquence regroupant un ensemble d'oscillateurs définis par les opérateurs bosoniques $\hat{c}_{\omega,n}^{(j)}$. Ces derniers respectent les relations de commutations suivantes

$$\left[\hat{c}_{\omega,n}^{(i)}, \hat{c}_{\omega',n'}^{(j)\dagger} \right] = \delta_{nn'} \delta(\omega - \omega') \delta_{ij}, \quad (2.142)$$

$$\left[\hat{c}_{\omega,n}^{(i)}, \hat{c}_{\omega',n'}^{(j)} \right] = 0. \quad (2.143)$$

L'interaction entre le système et l'environnement est décrite par l'Hamiltonien $\hat{H}_{SE}^{(I)}$. Le couplage plat entre les quasi-modes et leur bain associé est caractérisé par la fonction de couplage $\beta_n^{(j)}(\omega)$. C'est l'opération inverse qui est habituellement appliquée : la diagonalisation de Fano sur l'environnement et les quasi-modes

plasmoniques [39, 70] permet de retrouver la forme de l'Hamiltonien effectif continu (2.98). Le souvenir des quasi-modes dissous dans l'environnement est révélé par les profils lorentziens des fonctions de couplages $\kappa_n^{(lj)}(\omega)$ du réservoir structuré. En partant de ce modèle, nous pouvons construire le Lindbladien équivalent décrivant la relaxation des pseudos-modes (voir annexe 2.B). Nous obtenons l'équation maîtresse suivante

$$\frac{\partial \hat{\rho}_S(t)}{\partial t} = -\frac{i}{\hbar} \left[\hat{H}_S, \hat{\rho}_S(t) \right] + \sum_{n=1}^{+\infty} \sum_{j=1}^{N_{ind}} \gamma_n \left(\hat{b}_n^{(j)} \hat{\rho}_S(t) \hat{b}_n^{(j)\dagger} - \frac{1}{2} \left\{ \hat{b}_n^{(j)\dagger} \hat{b}_n^{(j)}, \hat{\rho}_S(t) \right\} \right), \quad (2.144)$$

qui peut être décomposée selon deux contributions [71] :

$$\frac{\partial \hat{\rho}_S(t)}{\partial t} = (\mathcal{L}_c + \mathcal{L}_{ic}) \hat{\rho}_S(t). \quad (2.145)$$

Le super-opérateur \mathcal{L}_c représente l'évolution cohérente et peut être défini à partir de l'Hamiltonien non-hermitien (2.134) comme suit

$$\mathcal{L}_c \hat{\rho}_S(t) = \frac{1}{\hbar} \left(-i \hat{H}_{eff}^{(d)} \hat{\rho}_S(t) + i \hat{\rho}_S(t) \hat{H}_{eff}^{(d)\dagger} \right) \quad (2.146)$$

$$= -\frac{i}{\hbar} \left[\hat{H}_S, \hat{\rho}_S(t) \right] - \sum_{n=1}^{+\infty} \sum_{j=1}^{N_{ind}} \frac{\gamma_n}{2} \left\{ \hat{b}_n^{(j)\dagger} \hat{b}_n^{(j)}, \hat{\rho}_S(t) \right\}. \quad (2.147)$$

Le deuxième terme traduit le comportement incohérent de la relaxation pouvant mener à un mélange statistique des états du système. Celui-ci s'écrit

$$\mathcal{L}_{ic} \hat{\rho}_S(t) = \sum_{n=1}^{+\infty} \sum_{j=1}^{N_{ind}} \gamma_n \hat{b}_n^{(j)} \hat{\rho}_S(t) \hat{b}_n^{(j)\dagger}. \quad (2.148)$$

2.4.2 Processus radiatif et profil de Fano

Construction de l'Hamiltonien effectif. Lorsque la sphère métallique devient suffisamment grosse alors l'approximation quasi-statique faite dans la sous-section 2.3.1 n'est plus valide et les profils de résonance issus de la décomposition modale de la densité d'états locale sont déformés. Nous voyons sur la figure 2.8 que ce comportement s'applique en particulier sur le mode dipolaire de la particule dont la résonance prend alors la forme d'un profil asymétrique de type Fano. Dans ce cas de figure, l'émetteur et les quasi-modes plasmoniques

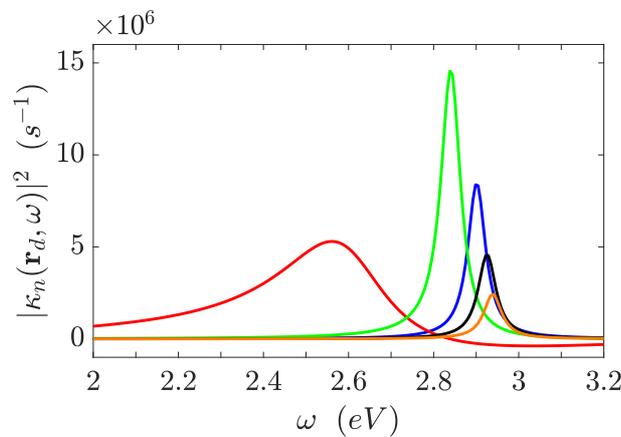


FIGURE 2.8 – Fonction de couplage pour les cinq premiers modes plasmoniques d'une nanoparticule de rayon $R = 50$ nm et un émetteur situé à 30 nm de sa surface (à comparer avec la figure 2.4 pour un rayon plus petit).

se couplent de façon significative avec le continuum de l'espace libre. Pour décrire cette relaxation radiative mutuelle du système émetteur+quasi-modes dans l'environnement, nous proposons un nouvel Hamiltonien basé

sur l'expression (2.138) mais considérant un bain de continuum radiatif $\hat{c}_{\omega,n}^r$ auquel se couple l'émetteur et les plasmons :

$$\hat{H}_{SE} = \hat{H}_S + \hat{H}_E + \hat{H}_{SE}^{(I)}, \quad (2.149)$$

$$\hat{H}_S = \hbar\omega_0\hat{\sigma}_+\hat{\sigma}_- + \sum_{n=1}^{+\infty} \hbar\omega_n\hat{b}_n^\dagger\hat{b}_n + \hbar \sum_{n=1}^{+\infty} \left(g_n(\mathbf{r}_d)\hat{\sigma}_+\hat{b}_n + g_n(\mathbf{r}_d)\hat{b}_n^\dagger\hat{\sigma}_- \right), \quad (2.150)$$

$$\hat{H}_E = \int d\omega \hbar\omega \sum_{n=1}^{+\infty} \hat{c}_{\omega,n}^{r\dagger}\hat{c}_{\omega,n}^r, \quad (2.151)$$

$$\hat{H}_{SE}^{(I)} = i\hbar \int d\omega \sum_{n=1}^{+\infty} \beta_n^r(\omega) \left(\hat{c}_{\omega,n}^{r\dagger}\hat{b}_n - \hat{b}_n^\dagger\hat{c}_{\omega,n}^r \right) + i\hbar \int d\omega \sum_{n=1}^{+\infty} \zeta_n(\omega) \left(\hat{c}_{\omega,n}^{r\dagger}\hat{\sigma}_- - \hat{\sigma}_+\hat{c}_{\omega,n}^r \right). \quad (2.152)$$

Nous supposons que la décomposition modale selon l'indice n de l'espace libre peut mener à la formation d'un ensemble de réservoirs radiatifs générés par les opérateurs $\hat{c}_{\omega,n}^{r\dagger}$. Il est important de noter qu'à ce stade, l'environnement comprend uniquement les réservoirs radiatifs de l'espace libre. Par la suite un second ensemble sera introduit pour prendre en compte les pertes ohmiques du métal. L'Hamiltonien d'interaction $\hat{H}_{SE}^{(I)}$ présente un terme supplémentaire tenant compte du couplage plat $\zeta_n(\omega)$ qu'il existe entre l'émetteur et le réservoir n . La figure 2.9 nous montre le schéma de couplage donné par l'Hamiltonien (2.149). L'état excité de l'émetteur $|e\rangle$ et l'état $|1_n\rangle = \hat{b}_n^\dagger|\mathcal{O}_S\rangle$ constituent les deux états discrets couplés. Ces derniers relaxent de manière radiative dans un même continuum de fréquence englobant les états $|1_{\omega,n}^r\rangle = \hat{c}_{\omega,n}^{r\dagger}|\mathcal{O}_E\rangle$. Procéder à une diagonalisation de Fano du sous ensemble comprenant les quasi-modes plasmoniques et leurs réservoirs respectifs permettrait de déterminer des états de Fano radiatifs $|1_n^r(\omega)\rangle$ formant le réservoir structuré de l'Hamiltonien effectif continu (2.99). Le module carré de la fonction de couplage $\kappa_n^r(\mathbf{r}_d, \omega)$ peut être calculé à partir du tenseur de Green (voir eq. (2.52)) en négligeant les pertes ohmiques du métal γ_e intervenant dans le modèle de Drude (2.194). Sur la

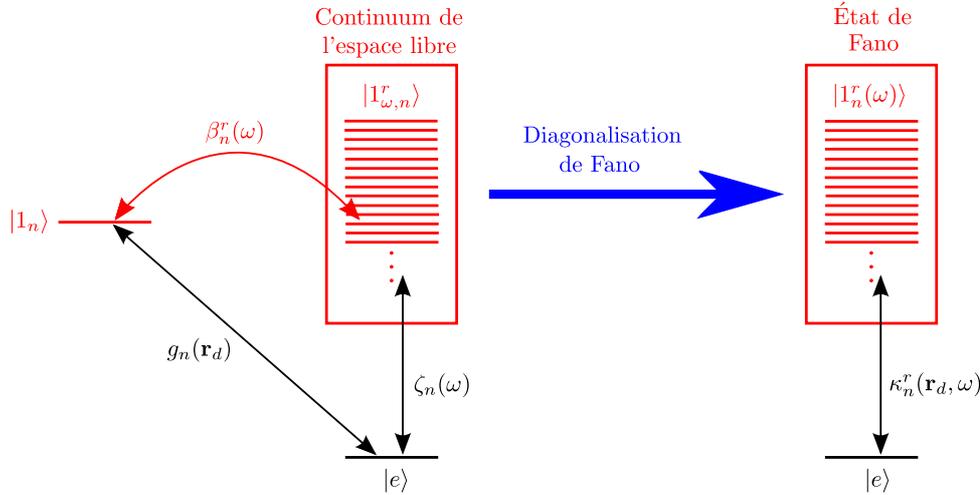


FIGURE 2.9 – Illustration d'un système composé d'un émetteur et d'un quasi-mode d'indice n en interaction avec le continuum de l'espace libre.

base de ce nouveau modèle, l'équation maîtresse peut être construite en appliquant la méthode décrite dans les sous-sections 2.B.1 et 2.B.2. L'équation de Langevin (2.211) associée aux opérateurs du réservoir s'écrit ici comme suit

$$\dot{c}_n^r(t) = \dot{c}_{\mathcal{O},n}^r(t) + \frac{\sqrt{\gamma_n^r}}{2}\hat{b}_n(t) + \frac{\sqrt{\gamma_{0,n}(\omega_0)}}{2}\hat{\sigma}_-(t), \quad (2.153)$$

où nous avons appliqué l'approximation de Markov sur les fonctions de couplage au continuum $\beta_n^r(\omega) \approx \beta_n^r(\omega_n) = (\gamma_n^r/2\pi)^{1/2}$ et $\zeta_n(\omega) \approx \zeta_n(\omega_0) = (\gamma_{0,n}(\omega_0)/2\pi)^{1/2}$. Le terme γ_n^r correspond au taux de relaxation radiatif du mode plasmonique n . Le taux de relaxation de l'émetteur dans le continuum n est donné par

$$\gamma_{0,n}(\omega_0) = \frac{2\omega_0^2}{\hbar\varepsilon_0 c^2} \mathbf{d} \cdot \Im \left[\bar{\mathbf{G}}_{0,n}(\mathbf{r}_d, \mathbf{r}_d, \omega_0) \right] \cdot (\mathbf{d})^*, \quad (2.154)$$

où $\bar{\mathbf{G}}_{0,n}(\mathbf{r}_d, \mathbf{r}_d, \omega_0)$ est issue de la décomposition sur les harmoniques sphériques (2.191) du tenseur de Green du vide. En sommant sur l'indice primaire n , nous retrouvons le taux de relaxation global caractérisant la relaxation de l'émetteur dans l'espace libre (émission spontanée) :

$$\gamma_0(\omega_0) = \sum_{n=1}^{+\infty} \gamma_{0,n}(\omega_0) = \frac{d^2 \omega_0^3}{3\hbar\pi\epsilon_0 c^3}. \quad (2.155)$$

Pour ne pas alourdir l'écriture des équations, nous n'indiquerons plus la dépendance en ω_0 des taux $\gamma_{0,n}(\omega_0)$ et $\gamma_0(\omega_0)$. La relation (2.153) est utilisée pour développer le calcul de l'équation de Langevin associée à l'opérateur système $\hat{X}_S(t)$. Après élimination de l'environnement, nous trouvons l'équation maîtresse suivante

$$\frac{\partial \hat{\rho}_S(t)}{\partial t} = -\frac{i}{\hbar} [\hat{H}_S, \hat{\rho}_S(t)] + \sum_{n=1}^{+\infty} \left[\hat{r}_n \hat{\rho}_S(t) \hat{r}_n^\dagger - \frac{1}{2} \left\{ \hat{r}_n^\dagger \hat{r}_n, \hat{\rho}_S(t) \right\} \right], \quad (2.156)$$

pour laquelle nous avons défini l'opérateur de radiation

$$\hat{r}_n = \sqrt{\gamma_n^r} \hat{b}_n + \sqrt{\gamma_{0,n}} \hat{\sigma}_-. \quad (2.157)$$

Le développement de cette équation sur les opérateurs \hat{b}_n et $\hat{\sigma}_-$ met en évidence trois super-opérateurs de dissipation :

$$\frac{\partial \hat{\rho}_S(t)}{\partial t} = -\frac{i}{\hbar} [\hat{H}_S, \hat{\rho}_S(t)] + \mathcal{D}_0(\hat{\rho}_S(t)) + \mathcal{D}_{PSL}(\hat{\rho}_S(t)) + \mathcal{D}_{0,PSL}(\hat{\rho}_S(t)) \quad (2.158)$$

avec

$$\mathcal{D}_0(\hat{\rho}_S(t)) = \gamma_0 \left(\hat{\sigma}_- \hat{\rho}_S(t) \hat{\sigma}_+ - \frac{1}{2} \left\{ \hat{\sigma}_+ \hat{\sigma}_-, \hat{\rho}_S(t) \right\} \right) \quad (2.159)$$

$$\mathcal{D}_{PSL}(\hat{\rho}_S(t)) = \sum_{n=1}^{+\infty} \gamma_n^r \left(\hat{b}_n \hat{\rho}_S(t) \hat{b}_n^\dagger - \frac{1}{2} \left\{ \hat{b}_n^\dagger \hat{b}_n, \hat{\rho}_S(t) \right\} \right) \quad (2.160)$$

$$\mathcal{D}_{0,PSL}(\hat{\rho}_S(t)) = \sum_{n=1}^{+\infty} \sqrt{\gamma_n^r \gamma_{0,n}} \left(\hat{\sigma}_- \hat{\rho}_S(t) \hat{b}_n^\dagger - \frac{1}{2} \left\{ \hat{b}_n^\dagger \hat{\sigma}_-, \hat{\rho}_S(t) \right\} + \hat{b}_n \hat{\rho}_S(t) \hat{\sigma}_+ - \frac{1}{2} \left\{ \hat{\sigma}_+ \hat{b}_n, \hat{\rho}_S(t) \right\} \right). \quad (2.161)$$

Les deux premiers dissipateurs $\mathcal{D}_0(\hat{\rho}_S(t))$ et $\mathcal{D}_{PSL}(\hat{\rho}_S(t))$ décrivent respectivement la relaxation intrinsèque de l'émetteur et celle des plasmons de surface localisés. Le troisième dissipateur traduit un processus de relaxation collectif résultant d'un couplage du système dans un réservoir mutuel. Ce dernier est responsable de la déformation des résonances lorentziennes menant aux profils de Fano. D'après la définition du super opérateur de l'évolution cohérente (2.146), l'Hamiltonien effectif discrétisé devient alors

$$\hat{H}_{eff}^{(d)} = \hat{H}_S - \frac{i\hbar}{2} \sum_{n=1}^{+\infty} \hat{r}_n^\dagger \hat{r}_n \quad (2.162)$$

$$\begin{aligned} &= \hbar \left(\omega_0 - i\frac{\gamma_0}{2} \right) \hat{\sigma}_+ \hat{\sigma}_- + \sum_{n=1}^{+\infty} \hbar \left(\omega_n - i\frac{\gamma_n^r}{2} \right) \hat{b}_n^\dagger \hat{b}_n \\ &\quad + \hbar \sum_{n=1}^{+\infty} \left[\left(g_n(\mathbf{r}_d) - i\frac{\sqrt{\gamma_n^r \gamma_{0,n}}}{2} \right) \hat{\sigma}_+ \hat{b}_n + \left(g_n(\mathbf{r}_d) - i\frac{\sqrt{\gamma_n^r \gamma_{0,n}}}{2} \right) \hat{b}_n^\dagger \hat{\sigma}_- \right]. \end{aligned} \quad (2.163)$$

Dans un souci de simplification d'écriture, la dépendance en \mathbf{r}_d des constantes de couplage $g_n(\mathbf{r}_d)$ ne sera plus précisée par la suite. Sur la base à une excitation $\{|e, \mathbf{0}\rangle, |g, 1_1\rangle, |g, 1_2\rangle, \dots, |g, 1_N\rangle\}$ prenant en compte un ensemble fini de N modes plasmoniques, l'Hamiltonien effectif discrétisé prend la forme matricielle suivante :

$$H_{eff}^{(d)} = \hbar \begin{pmatrix} -i\frac{\gamma_0}{2} & g_1(1 - i\alpha_1/2) & g_2(1 - i\alpha_2/2) & \cdots & g_N(1 - i\alpha_N/2) \\ g_1(1 - i\alpha_1/2) & \delta_1 - i\frac{\gamma_1^r}{2} & 0 & \cdots & 0 \\ g_2(1 - i\alpha_2/2) & 0 & \delta_2 - i\frac{\gamma_2^r}{2} & \cdots & \vdots \\ \vdots & \vdots & \cdots & \ddots & 0 \\ g_N(1 - i\alpha_N/2) & 0 & \cdots & 0 & \delta_N - i\frac{\gamma_N^r}{2} \end{pmatrix}, \quad (2.164)$$

pour lequel la référence d'énergie a été changée en appliquant la transformation unitaire (2.127) avec

$$\hat{\mathcal{R}}(t) = e^{-i\omega_0 t} \hat{\mathbb{1}} = e^{-i\omega_0 t} \left(\hat{\sigma}_+ \hat{\sigma}_- + \sum_{n=1}^N \hat{b}_n^\dagger \hat{b}_n \right). \quad (2.165)$$

Les termes non-diagonaux de $\hat{H}_{eff}^{(d)}$ font intervenir un paramètre $\alpha_n = \sqrt{\gamma_n^r \gamma_{0,n}} / g_n$ étant le ratio entre la relaxation directe de l'émetteur (donnée par $\gamma_{0,n}$) et la relaxation indirecte par couplage au mode plasmonique n (donnée par g_n^2 / γ_n^r). L'Hamiltonien (2.164) est équivalent à celui de Knight [72] pour lequel le paramètre de Fano vaut $q_{F,n} = 2/\alpha_n$. Lorsque l'émetteur est suffisamment proche de la sphère et/ou que le rayon de cette dernière diminue alors g_n devient grand et/ou γ_n^r devient petit. Le ratio α_n tend alors vers 0 et nous retrouvons bien l'Hamiltonien (2.122) dont les résonances plasmoniques sont lorentziennes. La dynamique des amplitudes de probabilité de la fonction d'onde (2.120) obéit au système d'équations suivant

$$\dot{C}_{e,0}(t) = -\frac{\gamma_0}{2} C_{e,0}(t) - i \sum_{n=1}^{+\infty} g_n \left(1 - i \frac{\alpha_n}{2} \right) C_{g,1}^n(t) \quad (2.166)$$

$$\dot{C}_{g,1}^m(t) = -i g_m \left(1 - i \frac{\alpha_m}{2} \right) C_{e,0}(t) - i \left(\delta_m - i \frac{\gamma_m^r}{2} \right) C_{g,1}^m(t). \quad (2.167)$$

Couplage faible. Nous nous plaçons maintenant dans le régime de couplage faible pour lequel la dynamique est régie majoritairement par un comportement irréversible de relaxation. Les nombreuses pertes des plasmons responsables de ce comportement sont bien plus importantes que les couplages aux modes ce qui se traduit par l'inégalité suivante

$$\sqrt{\sum_{n=1}^{+\infty} \frac{g_n^2}{\delta_n^2 + \left(\frac{\gamma_n^r}{2}\right)^2}} \ll 1. \quad (2.168)$$

Du fait que la dynamique liée aux oscillations de Rabi de période $T_n = \pi/g_n$ est bien plus lente que le temps de relaxation $\tau_n = 1/\gamma_n^r$, les modes plasmoniques ne seront pas peuplés durant l'évolution temporelle de la fonction d'onde et ils agiront comme un canal de relaxation supplémentaire. Nous pouvons donc éliminer adiabatiquement les états liés à ces modes en fixant $\dot{C}_{g,1}^n(t) \approx 0$ et en prenant comme condition initiale $|\psi(t)\rangle = |e, \mathbf{0}\rangle$. On en déduit l'expression suivante

$$C_{g,1}^n(t) = -\frac{g_n \left(1 - i \frac{\alpha_n}{2} \right)}{\left(\delta_n - i \frac{\gamma_n^r}{2} \right)} C_{e,0}(t). \quad (2.169)$$

que l'on peut injecter dans l'expression (2.166) pour trouver l'unique équation différentielle régissant la dynamique :

$$\dot{C}_{e,0}(t) = - \left[\frac{\gamma_0}{2} + \sum_{n=1}^{+\infty} \frac{g_n^2 \left(1 - i \frac{\alpha_n}{2} \right)^2}{i \delta_n + \frac{\gamma_n^r}{2}} \right] C_{e,0}(t). \quad (2.170)$$

La solution s'écrit

$$C_{e,0}(t) = C_{e,0}(0) e^{-i\Delta^r t} e^{-\frac{\Gamma^r}{2} t} \quad (2.171)$$

avec

$$\Delta^r = - \sum_{n=1}^{+\infty} \frac{g_n^2}{\delta_n^2 + \left(\frac{\gamma_n^r}{2}\right)^2} \left[\left(1 - \frac{\alpha_n^2}{4} \right) \delta_n + \alpha_n \frac{\gamma_n^r}{2} \right], \quad (2.172)$$

$$\Gamma^r = \gamma_0 + \sum_{n=1}^{+\infty} \frac{g_n^2}{\delta_n^2 + \left(\frac{\gamma_n^r}{2}\right)^2} \left[\left(1 - \frac{\alpha_n^2}{4} \right) \gamma_n^r - 2\alpha_n \delta_n \right], \quad (2.173)$$

le décalage de Lamb et le taux de relaxation total pour un émetteur interagissant faiblement avec les modes plasmoniques. Le taux de relaxation normalisé s'exprime ainsi

$$\frac{\Gamma^r}{\gamma_0} = 1 + \sum_{n=1}^{+\infty} \frac{\Gamma_n^r}{\gamma_0}, \quad (2.174)$$

avec

$$\frac{\Gamma_n^r}{\gamma_0} = F_{p,n}^r \frac{1}{1 + 4(Q_n^r)^2 \left(\frac{\omega_0 - \omega_n}{\omega_n}\right)^2} \left[1 - \frac{\alpha_n^2}{4} + 2\alpha_n Q_n^r \frac{\omega_0 - \omega_n}{\omega_n} \right]. \quad (2.175)$$

Le paramètre $F_{p,n}^r = 4g_n^2/(\gamma_n^r \gamma_0)$ est le facteur de Purcell et $Q_n^r = \omega_n/\gamma_n^r$ est le facteur de qualité du pseudo-mode n . En ne considérant que le terme d'ordre 1 en α_n , le profil de Fano du taux de relaxation normalisé (2.175) est équivalent à celui obtenu par Sauvan et ses collaborateurs [38]. Dans leurs travaux, ils étudient de manière classique des modes à fuites en définissant un volume modale effectif complexe \tilde{V}_n issue de l'analyse des modes quasi-normaux. Dans ce cadre, le paramètre de déformation est alors défini par le rapport $\alpha_n = \Im \left[\tilde{V}_n \right] / \Re \left[\tilde{V}_n \right]$. Nous voyons sur la figure 2.10 le résultat de l'ajustement des trois paramètres ω_1 , γ_1^r et g_1 en prenant pour référence le taux de relaxation donné par la règle d'or de Fermi [69, 73] :

$$\frac{\Gamma^r}{\gamma_0} = 1 + \frac{6\pi c}{\omega_0 d^2} \sum_{n=1}^{+\infty} \mathbf{d} \cdot \Im \left[\bar{\mathbf{G}}_{S,n}(\mathbf{r}_d, \mathbf{r}_d, \omega_0) \right] \cdot \mathbf{d}^*, \quad (2.176)$$

où $\bar{\mathbf{G}}_{S,n}(\mathbf{r}_d, \mathbf{r}_d, \omega_0)$ est issu de la décomposition modale du tenseur de Green diffusé (voir (2.192)). Afin de ne garder que la contribution radiative du système, nous éliminons les pertes ohmiques du métal intervenant dans le modèle de Drude (2.194) (c.a.d $\gamma_e = 0$). Les valeurs d'ajustement associées aux courbes de la figure 2.10

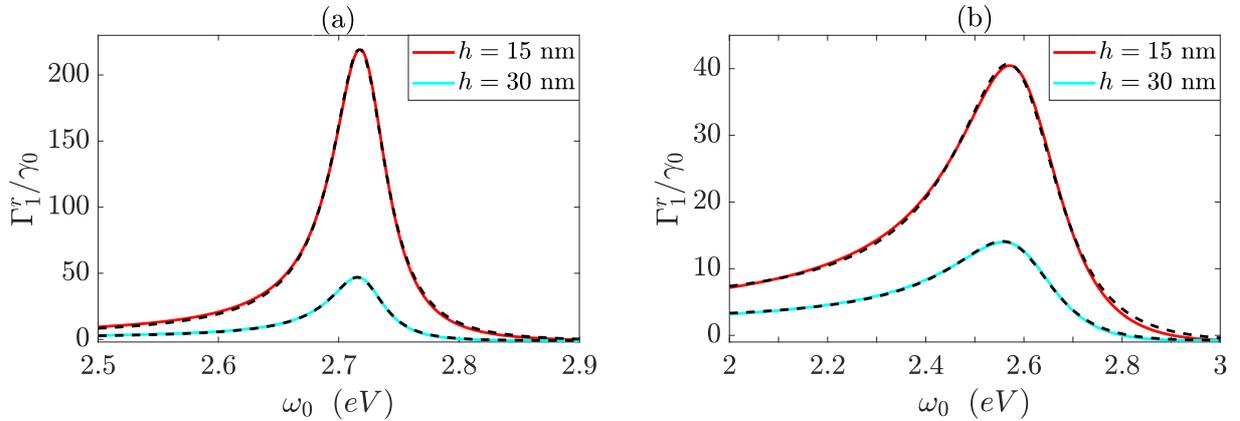


FIGURE 2.10 – Représentation graphique du taux de relaxation normalisé d'un émetteur se couplant avec le mode dipolaire d'une sphère de rayon $R = 30$ nm (a) et $R = 50$ nm (b). Les courbes rouges et cyan sont calculées à partir de la relation (2.176) en considérant un émetteur à 15 et 30 nm de la surface de la sphère et de moment dipolaire $d = 1$ debye. Les courbes en pointillés noires correspondent au résultat de l'ajustement fait à l'aide de la relation (2.175).

sont répertoriées dans le tableau 2.1. Pour une taille de sphère donnée, le ratio α_1 témoignant de la déformation du profil de résonance est d'autant plus grand que l'émetteur est éloigné car le couplage au continuum radiatif devient important. De même, lorsque les dimensions de la structure métallique augmentent alors le mode dipolaire devient de plus en plus radiatif et on retrouve une résonance Fano (α_1 élevé). Le facteur de qualité du plasmon est aussi fortement dégradé en présence de pertes radiatives.

2.4.3 Processus non-radiatif

Dans la sous-section précédente, nous avons négligé les pertes par absorption dans le métal. Pour décrire l'interaction globale de l'émetteur avec la sphère absorbante, nous ajoutons un réservoir non-radiatif dans

R (nm)	30		50	
h (nm)	15	30	15	30
ω_1 (eV)	2.719	2.719	2.596	2.597
γ_1^r (meV)	55.1	55.3	254.7	254.2
g_1 (meV)	-8.095×10^{-2}	-3.751×10^{-2}	-6.907×10^{-2}	-4.034×10^{-2}
Q_1^r	49.4	49.1	10.19	10.21
$F_{p,1}^r(\omega_0 = \omega_1)$	219.5	47	40.7	14.2
$\alpha_1(\omega_0 = \omega_1)$	-0.13	-0.27	-0.29	-0.48

TABLE 2.1 – Table des paramètres d’ajustement ω_1 , γ_1^r et g_1 et des paramètres déduits Q_1^r , $F_{p,1}^r$ et α_1 . Le facteur de Purcell et le ratio α_1 étant dépendant de la fréquence de transition de l’émetteur, nous choisissons de prendre les valeurs à $\omega_0 = \omega_1$ où l’exaltation est maximale.

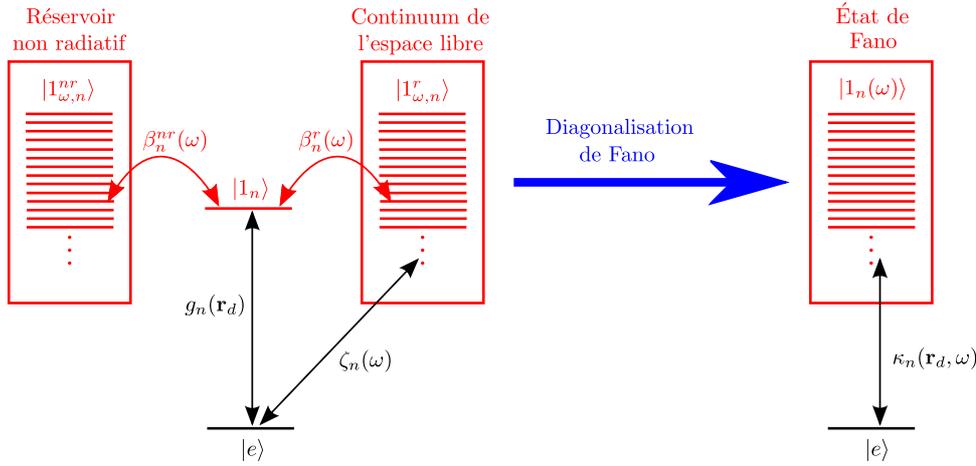


FIGURE 2.11 – Illustration d’un système composé d’un émetteur et d’un quasi-mode d’indice n en interaction avec le continuum de l’espace libre et un réservoir non radiatif.

le modèle des quasi-modes comme illustré sur la figure 2.11. Les vecteurs d’états associés sont donnés par $|1_{\omega,n}^{nr}\rangle = \hat{c}_{\omega,n}^{nr\dagger}|\emptyset_{\mathcal{E}}\rangle$ et ils se couplent aux quasi-modes n via la fonction de couplage $\beta_n^{nr}(\omega)$. L’Hamiltonien de ce système est donné par (2.149) avec

$$\hat{H}_E = \int d\omega \hbar\omega \sum_{n=1}^{+\infty} \hat{c}_{\omega,n}^{r\dagger} \hat{c}_{\omega,n}^r + \int d\omega \hbar\omega \sum_{n=1}^{+\infty} \hat{c}_{\omega,n}^{nr\dagger} \hat{c}_{\omega,n}^{nr}, \quad (2.177)$$

$$\begin{aligned} \hat{H}_{SE}^{(I)} = & i\hbar \int d\omega \sum_{n=1}^{+\infty} \beta_n^r(\omega) \left(\hat{c}_{\omega,n}^{r\dagger} \hat{b}_n - \hat{b}_n^\dagger \hat{c}_{\omega,n}^r \right) \\ & + i\hbar \int d\omega \sum_{n=1}^{+\infty} \zeta_n(\omega) \left(\hat{c}_{\omega,n}^{r\dagger} \hat{\sigma}_- - \hat{\sigma}_+ \hat{c}_{\omega,n}^r \right) \\ & + i\hbar \int d\omega \sum_{n=1}^{+\infty} \beta_n^{nr}(\omega) \left(\hat{c}_{\omega,n}^{nr\dagger} \hat{b}_n - \hat{b}_n^\dagger \hat{c}_{\omega,n}^{nr} \right). \end{aligned} \quad (2.178)$$

La dynamique de l’environnement est alors associée à deux équations de Langevin. La première est donnée par (2.153) et concerne le continuum de l’espace libre (émission radiative). La seconde est liée à l’absorption par le métal et s’écrit

$$\hat{c}_n^{nr}(t) = \hat{c}_{\emptyset,n}^{nr}(t) + \frac{\sqrt{\gamma_n^{nr}}}{2} \hat{b}_n(t), \quad (2.179)$$

où nous avons appliqué l'approximation de Markov $\beta_n^{nr}(\omega) \approx \beta_n^{nr}(\omega_n) = (\gamma_n^{nr}/2)^{1/2}$ avec γ_n^{nr} caractérisant les pertes non radiatives du système. L'équation maîtresse dérivant de ces équations prend la forme

$$\boxed{\frac{\partial \hat{\rho}_S(t)}{\partial t} = -\frac{i}{\hbar} [\hat{H}_S, \hat{\rho}_S(t)] + \sum_{n=1}^{+\infty} \hat{r}_n \hat{\rho}_S(t) \hat{r}_n^\dagger - \frac{1}{2} \left\{ \hat{r}_n^\dagger \hat{r}_n, \hat{\rho}_S(t) \right\} + \gamma_n^{nr} \left(\hat{b}_n \hat{\rho}_S(t) \hat{b}_n^\dagger - \frac{1}{2} \left\{ \hat{b}_n^\dagger \hat{b}_n, \hat{\rho}_S(t) \right\} \right)} \quad (2.180)$$

L'Hamiltonien effectif discrétisé respectant la relation (2.146) est donné par

$$\hat{H}_{eff}^{(d)} = \hat{H}_S - \frac{i\hbar}{2} \left(\sum_{n=1}^{+\infty} \hat{r}_n^\dagger \hat{r}_n + \gamma_n^{nr} \hat{b}_n^\dagger \hat{b}_n \right) \quad (2.181)$$

$$= \hbar \left(\omega_0 - i\frac{\gamma_0}{2} \right) \hat{\sigma}_+ \hat{\sigma}_- + \sum_{n=1}^{+\infty} \hbar \left(\omega_n - i\frac{\gamma_n^r + \gamma_n^{nr}}{2} \right) \hat{b}_n^\dagger \hat{b}_n + \hbar \sum_{n=1}^{+\infty} \left[\left(g_n(\mathbf{r}_d) - i\frac{\sqrt{\gamma_n^r \gamma_{0,n}}}{2} \right) \hat{\sigma}_+ \hat{b}_n + \left(g_n(\mathbf{r}_d) - i\frac{\sqrt{\gamma_n^r \gamma_{0,n}}}{2} \right) \hat{b}_n^\dagger \hat{\sigma}_- \right]. \quad (2.182)$$

Nous constatons que le couplage au réservoir non-radiatif engendre uniquement une augmentation des pertes des pseudo-modes plasmoniques. Ceci induit un élargissement des profils lorentziens sans en modifier la forme. La dynamique des amplitudes de probabilité obéit au système d'équations suivant

$$\dot{C}_{e,0}(t) = -\frac{\gamma_0}{2} C_{e,0}(t) - i \sum_{n=1}^{+\infty} g_n \left(1 - i\frac{\alpha_n}{2} \right) C_{g,1}^n(t) \quad (2.183)$$

$$\dot{C}_{g,1}^n(t) = -ig_n \left(1 - i\frac{\alpha_n}{2} \right) C_{e,0}(t) - i \left(\delta_n - i\frac{\gamma_n^r + \gamma_n^{nr}}{2} \right) C_{g,1}^n(t). \quad (2.184)$$

Après élimination adiabatique des pseudo-modes en considérant le régime de couplage faible où

$$\sqrt{\sum_{n=1}^{+\infty} \frac{g_n^2}{\delta_n^2 + \left(\frac{\gamma_n^r + \gamma_n^{nr}}{2} \right)^2}} \ll 1, \quad (2.185)$$

nous trouvons le taux de relaxation normalisé suivant

$$\frac{\Gamma_n}{\gamma_0} = F_{p,n} \frac{1}{1 + 4(Q_n)^2 \left(\frac{\omega_0 - \omega_n}{\omega_n} \right)^2} \left[1 - \frac{\alpha_n^2}{4} + 2\alpha_n Q_n \frac{\omega_0 - \omega_n}{\omega_n} \right]. \quad (2.186)$$

L'expression de ce taux est équivalente à celle donnant le taux de relaxation radiatif (2.175) avec

$$F_{p,n} = \frac{4g_n^2}{\gamma_0(\gamma_n^r + \gamma_n^{nr})} = \frac{\gamma_n^r}{\gamma_n^r + \gamma_n^{nr}} F_{p,n}^r, \quad (2.187)$$

$$Q_n = \frac{\omega_n}{\gamma_n^r + \gamma_n^{nr}} = \frac{\gamma_n^r}{\gamma_n^r + \gamma_n^{nr}} Q_n^r, \quad (2.188)$$

étant le facteur de Purcell et le facteur de qualité global. Le facteur de qualité vérifie

$$\frac{1}{Q_n} = \frac{1}{Q_n^r} + \frac{1}{Q_n^{nr}}, \quad (2.189)$$

et le facteur de Purcell suit une relation analogue. La figure 2.12 nous montre la correspondance entre les taux de relaxations issus de la règle d'or de Fermi (2.176) et les résultats de l'ajustement sur le paramètre γ_1^{nr} dont les valeurs sont présentées dans la table 2.2. Les valeurs de l'ajustement des termes ω_1 , g_1 et γ_1^r sur le taux radiatif répertoriées dans la table 2.1 sont reprises ici. L'ajout d'un canal de dissipation non-radiatif a pour effet de détériorer le facteur de qualité et le facteur de Purcell des pseudo-modes plasmoniques. Nous avons représenté sur la figure 2.13, l'évolution des pertes radiatives et non radiatives du mode dipolaire en fonction du rayon de la sphère. Nous constatons que la partie diffusée par la particule devient plus importante lorsque celle-ci grossit alors que les pertes par absorption diminuent. Lorsque R est petit, les pertes non-radiatives tendent vers la valeur donnée par les pertes ohmiques du métal $\gamma_1^{nr} \approx \gamma_e = 50$ meV.

R (nm)	30		50	
h (nm)	15	30	15	30
γ_1^{nr} (meV)	47.3	47.2	40.9	40.2
Q_1	26.55	26.52	8.78	8.82
$F_{p,1}(\omega_0 = \omega_1)$	118.1	25.4	35.1	12.2

TABLE 2.2 – Table des valeurs prises par γ_1^{nr} , $F_{p,1}$ et Q_1 pour le tracé des courbes en pointillés noire de la figure 2.12.

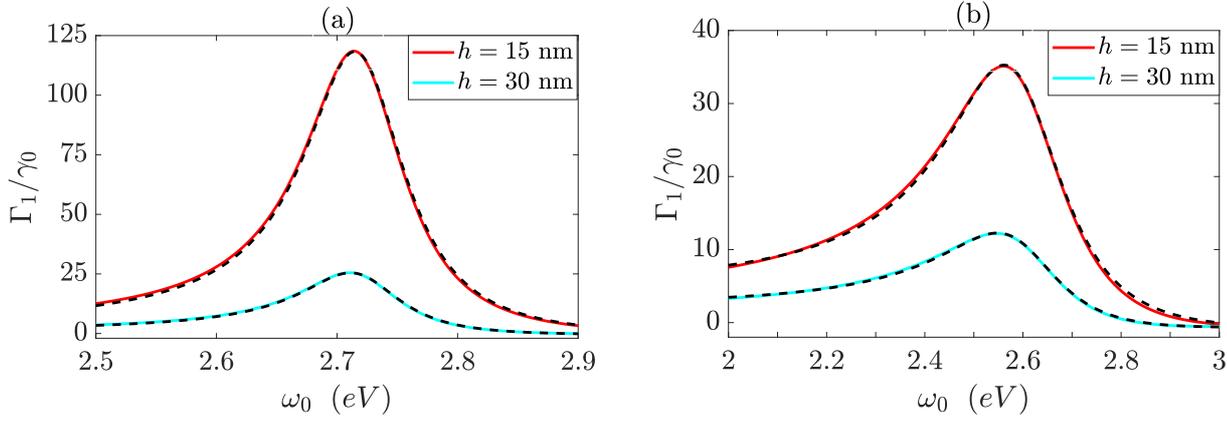


FIGURE 2.12 – Représentation graphique du taux de relaxation normalisé d'un émetteur se couplant avec le mode dipolaire d'une sphère de rayon $R = 30$ nm (a) et $R = 50$ nm (b). Les courbes rouges et cyans sont calculées à partir de la relation (2.176) en considérant un émetteur à 15 et 30 nm de la surface de la sphère et de moment dipolaire $d = 1$ debye. Les courbes en pointillés noirs sont obtenues après ajustement sur le paramètre γ_1^{nr} .

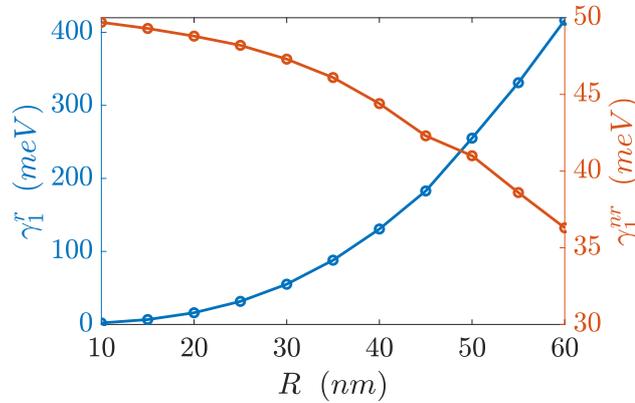


FIGURE 2.13 – Évolution des pertes du pseudo-mode plasmonique $n = 1$ en fonction de la taille de la particule métallique.

2.5 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté un modèle permettant de décrire simplement l'interaction d'émetteurs quantiques avec les plasmons de surface localisés supportés par une nano-particule métallique. La décomposition modale de la densité d'état locale constitue l'étape clé de sa construction et révèle les profils lorentziens des fonctions de couplages témoignant de la structuration du continuum pour chaque mode plasmonique. L'intégration de ce continuum met en évidence un ensemble de pseudo-modes discrets présentant des pertes importantes. Nous avons vu que la description du couplage à plusieurs émetteurs fait intervenir la notion de recouvrement spatial des champs plasmoniques pouvant induire des couplages croisés entre émetteurs. Enfin, il a été intéressant d'étendre ce modèle pour qu'il prenne en compte les possibles profils de type Fano des fonctions de couplage apparaissant lorsque la taille et/ou la distance émetteur/particule devient importante. Hormis la der-

nière section traitant de ces profils de Fano, l'ensemble de la construction du modèle effectif repose sur une démarche purement analytique basé sur une méthode de quantification du champ électromagnétique en milieu dispersif proposée par Welsch *et al.* [43] (approche toujours sujette à débat [47, 48]). C'est en grande partie grâce à l'utilisation du développement du tenseur de Green sur les harmoniques sphériques vectorielles que cela a été possible. Néanmoins, pour des structures ayant une géométrie plus complexe que la sphère, le tenseur de Green peut être calculé numériquement [74–76]. Il faut dans ce cas de figure s'assurer que les modes formant la base du modèle respectent bien les relations d'orthogonalités afin d'éviter d'omettre par erreur des couplages possibles entre modes. Au delà de la description de nouveaux phénomènes (superradiance, nanosource hybride en couplage fort, etc) qui seront présentés dans les prochains chapitres, ce formalisme constitue un modèle pour l'étude d'Hamiltoniens non-hermitiens, inhérent à la présence de pertes. Enfin, l'hamiltonien effectif, aussi bien que les équations maîtresses proposées, établissent un lien direct entre la nanophotonique quantique et l'électrodynamique en cavité. Cela permettra d'utiliser les récents développements de l'électrodynamique quantique en cavité pour proposer des dispositifs nano-optiques quantiques originaux.

Annexe

2.A Tenseur de Green pour une sphère métallique plongée dans un milieu diélectrique homogène

Le calcul du tenseur de Green pour un milieu stratifié à symétrie sphérique est détaillé dans les références [61,77,78]. Sa construction se fait en deux étapes : le développement dans la base produit tensoriel des fonctions propres du milieu homogène et la détermination des coefficients du développement en imposant des conditions à l'interface entre les milieux. De façon générale, le tenseur de Green peut se décomposer ainsi :

$$\bar{\bar{\mathbf{G}}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega) = \bar{\bar{\mathbf{G}}}_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega)\delta_{f_s} + \bar{\bar{\mathbf{G}}}_S(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega). \quad (2.190)$$

Le vecteur \mathbf{r}' indique la position de la source alors que \mathbf{r} indique la position du champ. La contribution directe est donnée par le terme $\bar{\bar{\mathbf{G}}}_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega)$ et intervient seulement lorsque la source et le champ sont situés dans la même couche. Le deuxième terme $\bar{\bar{\mathbf{G}}}_S(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega)$ tient compte de la propagation après diffusion par la ou les couches qui entourent les points \mathbf{r} et \mathbf{r}' . Ces deux termes sont étendus sur la base des fonctions vectorielles $\mathbf{M}(\mathbf{r}, q)$ et $\mathbf{N}(\mathbf{r}, q)$ ainsi :

$$\begin{aligned} \bar{\bar{\mathbf{G}}}_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega) &= \frac{\delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}')}{k_s^2} \mathbf{e}_r \otimes \mathbf{e}_r + i \frac{k_s}{4\pi} \sum_{p=e,o} \sum_{n=0}^{+\infty} \sum_{m=0}^n (2 - \delta_{0m}) \frac{(2n+1)(n-m)!}{n(n+1)(n+m)!} \\ &\times \begin{cases} \mathbf{M}_{nmp}^{(1)}(\mathbf{r}, k_s) \otimes \mathbf{M}_{nmp}^{(0)}(\mathbf{r}', k_s) + \mathbf{N}_{nmp}^{(1)}(\mathbf{r}, k_s) \otimes \mathbf{N}_{nmp}^{(0)}(\mathbf{r}', k_s) & r \geq r' \\ \mathbf{M}_{nmp}^{(0)}(\mathbf{r}, k_s) \otimes \mathbf{M}_{nmp}^{(1)}(\mathbf{r}', k_s) + \mathbf{N}_{nmp}^{(0)}(\mathbf{r}, k_s) \otimes \mathbf{N}_{nmp}^{(1)}(\mathbf{r}', k_s) & r \leq r' \end{cases} \end{aligned} \quad (2.191)$$

$$\begin{aligned} \bar{\bar{\mathbf{G}}}_S(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega) &= i \frac{k_s}{4\pi} \sum_{p=e,o} \sum_{n=0}^{+\infty} \sum_{m=0}^n (2 - \delta_{0m}) \frac{(2n+1)(n-m)!}{n(n+1)(n+m)!} \\ &\times \left\{ (1 - \delta_{f_1}) \mathbf{M}_{nmp}^{(1)}(\mathbf{r}, k_f) \otimes \left((1 - \delta_{s_2}) A_M^{fs} \mathbf{M}_{nmp}^{(0)}(\mathbf{r}', k_s) + (1 - \delta_{s_1}) B_M^{fs} \mathbf{M}_{nmp}^{(1)}(\mathbf{r}', k_s) \right) \right. \\ &+ (1 - \delta_{f_1}) \mathbf{N}_{nmp}^{(1)}(\mathbf{r}, k_f) \otimes \left((1 - \delta_{s_2}) A_N^{fs} \mathbf{N}_{nmp}^{(0)}(\mathbf{r}', k_s) + (1 - \delta_{s_1}) B_N^{fs} \mathbf{N}_{nmp}^{(1)}(\mathbf{r}', k_s) \right) \\ &+ (1 - \delta_{f_2}) \mathbf{M}_{nmp}^{(0)}(\mathbf{r}, k_f) \otimes \left((1 - \delta_{s_2}) C_M^{fs} \mathbf{M}_{nmp}^{(0)}(\mathbf{r}', k_s) + (1 - \delta_{s_1}) D_M^{fs} \mathbf{M}_{nmp}^{(1)}(\mathbf{r}', k_s) \right) \\ &\left. + (1 - \delta_{f_2}) \mathbf{N}_{nmp}^{(0)}(\mathbf{r}, k_f) \otimes \left((1 - \delta_{s_2}) C_N^{fs} \mathbf{N}_{nmp}^{(0)}(\mathbf{r}', k_s) + (1 - \delta_{s_1}) D_N^{fs} \mathbf{N}_{nmp}^{(1)}(\mathbf{r}', k_s) \right) \right\}. \end{aligned} \quad (2.192)$$

Le vecteur d'onde prend la valeur

$$k_{s,f} = \frac{\omega}{c} \sqrt{\mu_{s,f} \varepsilon_{s,f}} \quad s, f = 1, 2, \quad (2.193)$$

selon la couche de permittivité relative électrique et magnétique $\varepsilon_{s,f}$ et $\mu_{s,f}$. Pour le système particulier que l'on étudie, nous considérons deux couches non-magnétiques ($\mu_{1,2} = 1$). La permittivité relative du métal correspondant à ε_1 est donnée par le modèle de Drude suivant

$$\varepsilon_1 = \varepsilon_m(\omega) = \varepsilon_\infty - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + i\gamma_e \omega}, \quad (2.194)$$

où ε_∞ est la valeur limite aux hautes fréquences, ω_p est la fréquence plasma et γ_e est l'amortissement Landau du métal. La permittivité ε_2 du milieu diélectrique dans lequel se trouve la nano-particule sera considérée comme constante et notée ε_b . Les indices 1 et 0 présents sur les fonctions sphériques vectorielles indiquent

que l'on utilise une fonction de Bessel ou de Hankel de première espèce respectivement dans les expressions des fonctions vectorielles (2.25) et (2.26). Les coefficients $A_{\mathbf{M}}^{fs}$, $B_{\mathbf{M}}^{fs}$, $A_{\mathbf{N}}^{fs}$, $B_{\mathbf{N}}^{fs}$, $C_{\mathbf{M}}^{fs}$, $D_{\mathbf{M}}^{fs}$, $C_{\mathbf{N}}^{fs}$ et $D_{\mathbf{N}}^{fs}$ sont déterminés à partir des conditions aux limites :

$$\lim_{\delta r \rightarrow 0^+} \mathbf{e}_{\mathbf{r}} \times \bar{\bar{\mathbf{G}}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega) \Big|_{r=R_i-\delta r} = \lim_{\delta r \rightarrow 0^+} \mathbf{e}_{\mathbf{r}} \times \bar{\bar{\mathbf{G}}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega) \Big|_{r=R_i+\delta r} \quad (2.195)$$

$$\frac{1}{\mu_j} \lim_{\delta r \rightarrow 0^+} \mathbf{e}_{\mathbf{r}} \times \nabla \times \bar{\bar{\mathbf{G}}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega) \Big|_{r=R_i-\delta r} = \frac{1}{\mu_{i+1}} \lim_{\delta r \rightarrow 0^+} \mathbf{e}_{\mathbf{r}} \times \nabla \times \bar{\bar{\mathbf{G}}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega) \Big|_{r=R_i+\delta r}, \quad (2.196)$$

représentant la continuité du champ électrique et magnétique à l'interface entre deux couches située à la distance R_i de l'origine. Le terme $\delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}') \mathbf{e}_{\mathbf{r}} \otimes \mathbf{e}_{\mathbf{r}}$ apparaissant dans l'expression (2.191) sert à expliciter la singularité de $\bar{\bar{\mathbf{G}}}_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega)$. Ce terme peut lui aussi être développé sur la base produit tensorielle des fonctions vectorielles $\mathbf{N}(\mathbf{r}, q)$ et $\mathbf{L}(\mathbf{r}, q)$ [63] :

$$\delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}') \mathbf{e}_{\mathbf{r}} \otimes \mathbf{e}_{\mathbf{r}} = \sum_{nmp} \bar{\bar{\delta}}_{nmp}(\mathbf{r} - \mathbf{r}'), \quad (2.197)$$

avec

$$\begin{aligned} \bar{\bar{\delta}}_{nmp}(\mathbf{r} - \mathbf{r}') = \int_0^{+\infty} dq \frac{q^2 (2n+1)(n-m)!}{\pi^2 n(n+1)(n+m)!(1+\delta_{m0})} & \left[\mathbf{M}_{mnp}(\mathbf{r}, q) \otimes \mathbf{M}_{mnp}(\mathbf{r}', q) \right. \\ & \left. + \mathbf{N}_{mnp}(\mathbf{r}, q) \otimes \mathbf{N}_{mnp}(\mathbf{r}', q) + n(n+1) \mathbf{L}_{mnp}(\mathbf{r}, q) \otimes \mathbf{L}_{mnp}(\mathbf{r}', q) \right]. \end{aligned} \quad (2.198)$$

Annexe

2.B Dérivation de l'équation maîtresse en régime de couplage fort

Dans cette annexe, nous reprenons la procédure standard pour construire une équation maîtresse à partir de l'Hamiltonien (2.138). Nous écrivons les équations de Langevin pour tout opérateur du système puis nous éliminerons l'environnement en effectuant une trace partielle sur ces équations [40, 79].

2.B.1 Équations de Langevin

En se plaçant dans la représentation de Heisenberg, la dépendance temporelle est reportée sur les opérateurs et la dynamique est donnée par les équations de Langevin. Pour un opérateur \hat{O} en représentation de Schrödinger, l'opérateur $\hat{O}(t)$ en représentation de Heisenberg est donné par :

$$\hat{O}(t) = \hat{U}^\dagger(t, t_0) \hat{O} \hat{U}(t, t_0), \quad (2.199)$$

avec $\hat{U}(t, t_0)$ étant le propagateur du temps initial t_0 au temps t défini ainsi

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} (\hat{U}(t, t_0)) = \hat{H}_{SE} \hat{U}(t, t_0). \quad (2.200)$$

Comme l'ensemble des opérateurs en représentation de Schrödinger intervenant dans \hat{H}_{SE} ne dépendent pas du temps, la distinction entre les représentations sera faite en remarquant ou non une dépendance temporelle des opérateurs. La dérivée temporelle de n'importe quel opérateur de l'espace $\mathcal{S} \oplus \mathcal{E}$ est donné par

$$\frac{\partial}{\partial t} (\hat{O}(t)) = -\frac{i}{\hbar} [\hat{O}(t), \hat{H}_{SE}(t)]. \quad (2.201)$$

Nous commençons d'abord par écrire l'équation de Langevin associé aux opérateurs des bains d'oscillateurs :

$$\frac{\partial}{\partial t} (\hat{c}_{\omega,n}^{(j)}(t)) = -i\omega \hat{c}_{\omega,n}^{(j)}(t) + \beta_n^{(j)}(\omega) \hat{b}_n^{(j)}(t). \quad (2.202)$$

L'équation (2.202) peut être intégrée d'un temps initial t_0 à un temps t en utilisant la méthode de variation de la constante. On obtient

$$\hat{c}_{\omega,n}^{(j)}(t) = \hat{c}_{\omega,n}^{(j)}(t_0) e^{-i\omega(t-t_0)} + \int_{t_0}^t dt' \beta_n^{(j)}(\omega) \hat{b}_n^{(j)}(t') e^{-i\omega(t-t')}. \quad (2.203)$$

Au temps $t = t_0$ le propagateur prend la forme $\hat{U}(t_0, t_0) = \mathbb{1}$. D'après la relation (2.199), l'opérateur $\hat{c}_{\omega,n}^{(j)}(t_0)$ coïncide donc avec l'opérateur $\hat{c}_{\omega,n}^{(j)}$. Nous définissons maintenant l'opérateur de bain intégré

$$\hat{c}_n^{(j)}(t) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega \hat{c}_{\omega,n}^{(j)}(t). \quad (2.204)$$

En injectant l'expression (2.203) dans (2.204), cet opérateur prend la forme

$$\hat{c}_n^{(j)}(t) = \hat{c}_{\emptyset,n}^{(j)}(t) + \int_{t_0}^t dt' \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega \frac{\beta_n^{(j)}(\omega)}{\sqrt{2\pi}} \hat{b}_n^{(j)}(t') e^{-i\omega(t-t')}, \quad (2.205)$$

avec

$$\hat{c}_{\emptyset,n}^{(j)}(t) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega \hat{c}_{\omega,n}^{(j)} e^{-i\omega(t-t_0)} \quad (2.206)$$

l'opérateur du bain intégré isolé, c'est à dire sans aucune interaction avec le système. Nous appliquons l'approximation de Markov consistant à admettre que le couplage des modes plasmoniques avec le continuum est

suffisamment plat autour des résonances plasmoniques et donc que $\beta_n^{(j)}(\omega) \approx \beta_n^{(j)}(\omega_n) = (\gamma_n/2\pi)^{1/2}$. De plus le domaine d'intégration sur ω est étendu à $]-\infty, +\infty[$. L'expression de l'opérateur de bain intégré devient donc

$$\hat{c}_n^{(j)}(t) = \hat{c}_{\emptyset,n}^{(j)}(t) + \int_{t_0}^t dt' \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega \frac{\sqrt{\gamma_n}}{2\pi} \hat{b}_n^{(j)}(t') e^{-i\omega(t-t')}, \quad (2.207)$$

et peut se simplifier en utilisant la distribution de Dirac suivante

$$\delta(t-t') = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega e^{-i\omega(t-t')}, \quad (2.208)$$

$$\int_{t_0}^t dt' \delta(t-t') \hat{b}_n^{(j)}(t') = \frac{1}{2} \Theta(t-t_0) \hat{b}_n^{(j)}(t), \quad (2.209)$$

où $\Theta(t-t_0)$ est la fonction de Heaviside définie par

$$\Theta(t-t_0) = \begin{cases} 0 & t-t_0 < 0 \\ 1 & t-t_0 > 0. \end{cases} \quad (2.210)$$

Pour $t > t_0$, l'opérateur de bain intégré prend la forme finale suivante

$$\hat{c}_n^{(j)}(t) = \hat{c}_{\emptyset,n}^{(j)}(t) + \frac{\sqrt{\gamma_n}}{2} \hat{b}_n^{(j)}(t). \quad (2.211)$$

L'expression ci-dessus va nous permettre d'établir une relation importante de l'équation de Langevin pour tout opérateur $\hat{X}_S(t)$ appartenant au système \mathcal{S} . On commence par écrire

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} \left(\hat{X}_S(t) \right) &= -\frac{i}{\hbar} \left[\hat{X}_S(t), \hat{H}_{SE}(t) \right], \\ &= -\frac{i}{\hbar} \left(\left[\hat{X}_S(t), \hat{H}_S(t) \right] + \left[\hat{X}_S(t), \hat{H}_{SE}^{(I)}(t) \right] \right). \end{aligned} \quad (2.212)$$

L'Hamiltonien $\hat{H}_E(t)$ n'intervient pas dans l'expression (2.212) car le système et l'environnement sont deux espaces distincts. L'ensemble des opérateurs de \mathcal{S} commute donc avec l'ensemble des opérateurs de \mathcal{E} . En utilisant les formules (2.141) et (2.199), on obtient

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} \left(\hat{X}_S(t) \right) &= -\frac{i}{\hbar} \left[\hat{X}_S(t), \hat{H}_S(t) \right] \\ &+ \sum_{n=1}^{+\infty} \sum_{j=1}^{N_{ind}} \sqrt{\frac{\gamma_n}{2\pi}} \left(\int_{-\infty}^{+\infty} d\omega \hat{c}_{\omega,n}^{(j)\dagger}(t) \left[\hat{X}_S(t), \hat{b}_n^{(j)}(t) \right] - \left[\hat{X}_S(t), \hat{b}_n^{(j)\dagger}(t) \right] \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega \hat{c}_{\omega,n}^{(j)}(t) \right). \end{aligned} \quad (2.213)$$

On remarque que les opérateurs de bain intégré définis par (2.204) interviennent dans la dérivée temporelle de l'opérateur $\hat{X}_S(t)$. En utilisant la forme finale (2.211) et en développant on obtient la forme de l'équation de Langevin pour tout opérateur du système :

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} \left(\hat{X}_S(t) \right) &= -\frac{i}{\hbar} \left[\hat{X}_S(t), \hat{H}_S(t) \right] + \sum_{n=1}^N \sum_{j=1}^{N_{ind}} \mathcal{I}_{\emptyset,n}^{(j)} \left(\hat{X}_S(t) \right) \\ &+ \sum_{n=1}^{+\infty} \sum_{j=1}^{N_{ind}} \gamma_n \left(\hat{b}_n^{(j)\dagger}(t) \hat{X}_S(t) \hat{b}_n^{(j)}(t) - \frac{1}{2} \left\{ \hat{b}_n^{(j)\dagger}(t) \hat{b}_n^{(j)}(t), \hat{X}_S(t) \right\} \right), \end{aligned} \quad (2.214)$$

avec

$$\mathcal{I}_{\emptyset,n}^{(j)} \left(\hat{X}_S(t) \right) = \sqrt{\gamma_n} \left(\hat{c}_{\emptyset,n}^{(j)\dagger}(t) \left[\hat{X}_S(t), \hat{b}_n^{(j)}(t) \right] - \left[\hat{X}_S(t), \hat{b}_n^{(j)\dagger}(t) \right] \hat{c}_{\emptyset,n}^{(j)}(t) \right), \quad (2.215)$$

étant un super-opérateur faisant intervenir les opérateurs de bains intégrés isolés $\hat{c}_{\emptyset,n}^{(j)}(t)$. Le terme $\left\{ \hat{b}_n^{(j)\dagger}(t) \hat{b}_n^{(j)}(t), \hat{X}_S(t) \right\}$ intervenant dans le troisième terme de (2.214) est l'anti-commutateur des opérateurs $\hat{b}_n^{(j)\dagger}(t) \hat{b}_n^{(j)}(t)$ et $\hat{X}_S(t)$.

2.B.2 Élimination de l'environnement

Nous introduisons maintenant la matrice densité $\hat{\rho}(t)$ définie sur l'ensemble $\mathcal{S} \oplus \mathcal{E}$ pour laquelle nous voulons déterminer l'équation maîtresse. Nous définissons tout d'abord la valeur moyenne de l'opérateur \hat{X}_S comme étant

$$\langle \hat{X}_S \rangle (t) = \text{Tr} \left\{ \hat{X}_S \hat{\rho}(t) \right\} = \text{Tr} \left\{ \hat{X}_S(t) \hat{\rho}(t_0) \right\}, \quad (2.216)$$

où Tr désigne la trace sur l'ensemble complet $\mathcal{S} \oplus \mathcal{E}$. On admettra qu'au temps initial $t = t_0$, la matrice densité peut se décomposer sur le système et l'environnement ainsi :

$$\hat{\rho}(t_0) = \hat{\rho}_S(t_0) \otimes \hat{\rho}_E(t_0), \quad (2.217)$$

où $\hat{\rho}_S(t_0) = \text{Tr}_E \{ \hat{\rho}(t_0) \}$ et $\hat{\rho}_E(t_0) = \text{Tr}_S \{ \hat{\rho}(t_0) \}$. Les termes Tr_E et Tr_S représentent respectivement la trace partielle sur l'environnement et le système. En dérivant l'équation (2.216) nous obtenons

$$\frac{\partial}{\partial t} \langle \hat{X}_S \rangle (t) = \text{Tr} \left\{ \hat{X}_S \frac{\partial \hat{\rho}(t)}{\partial t} \right\} = \text{Tr} \left\{ \frac{\partial \hat{X}_S(t)}{\partial t} \hat{\rho}(t_0) \right\}. \quad (2.218)$$

En utilisant la relation (2.214) nous pouvons calculer le dernier élément de l'égalité (2.218) :

$$\begin{aligned} \text{Tr} \left\{ \frac{\partial \hat{X}_S(t)}{\partial t} \hat{\rho}(t_0) \right\} &= -\frac{i}{\hbar} \left(\text{Tr} \left\{ \hat{X}_S(t) \hat{H}_S(t) \hat{\rho}(t_0) \right\} - \text{Tr} \left\{ \hat{H}_S(t) \hat{X}_S(t) \hat{\rho}(t_0) \right\} \right) \\ &+ \sum_{n=1}^{+\infty} \sum_{j=1}^{N_{ind}} \text{Tr} \left\{ \mathcal{I}_{\emptyset, n}^{(j)} \left(\hat{X}_S(t) \right) \hat{\rho}(t_0) \right\} + \sum_{n=1}^{+\infty} \sum_{j=1}^{N_{ind}} \gamma_n \left(\text{Tr} \left\{ \hat{b}_n^{(j)\dagger}(t) \hat{X}_S(t) \hat{b}_n^{(j)}(t) \hat{\rho}(t_0) \right\} \right) \\ &- \sum_{n=1}^{+\infty} \sum_{j=1}^{N_{ind}} \frac{\gamma_n}{2} \left(\text{Tr} \left\{ \hat{b}_n^{(j)\dagger}(t) \hat{b}_n^{(j)}(t) \hat{X}_S(t) \hat{\rho}(t_0) \right\} + \text{Tr} \left\{ \hat{X}_S(t) \hat{b}_n^{(j)\dagger}(t) \hat{b}_n^{(j)}(t) \hat{\rho}(t_0) \right\} \right). \end{aligned} \quad (2.219)$$

En appliquant la définition (2.199) sur les opérateurs du système $\hat{X}_S(t)$, $\hat{H}_S(t)$ et $\hat{b}_n^{(j)}(t)$ et en utilisant les propriétés de conservation de la trace par permutation circulaire (c'est à dire $\text{Tr} \{ ABC \} = \text{Tr} \{ BCA \} = \text{Tr} \{ CAB \}$), nous pouvons travailler avec les opérateurs en représentation de Schrödinger et reporter la dépendance temporelle sur la matrice densité (hormis pour le terme faisant intervenir $\mathcal{I}_{\emptyset, n}^{(j)}$ que l'on traitera plus tard). Nous avons alors

$$\begin{aligned} \text{Tr} \left\{ \frac{\partial \hat{X}_S(t)}{\partial t} \hat{\rho}(t_0) \right\} &= -\frac{i}{\hbar} \left(\text{Tr} \left\{ \hat{X}_S \hat{H}_S \hat{\rho}(t) \right\} - \text{Tr} \left\{ \hat{X}_S \hat{\rho}(t) \hat{H}_S \right\} \right) \\ &+ \sum_{n=1}^{+\infty} \sum_{j=1}^{N_{ind}} \text{Tr} \left\{ \mathcal{I}_{\emptyset, n}^{(j)} \left(\hat{X}_S(t) \right) \hat{\rho}(t_0) \right\} + \sum_{n=1}^{+\infty} \sum_{j=1}^{N_{ind}} \gamma_n \left(\text{Tr} \left\{ \hat{X}_S \hat{b}_n^{(j)} \hat{\rho}(t) \hat{b}_n^{(j)\dagger} \right\} \right) \\ &- \sum_{n=1}^{+\infty} \sum_{j=1}^{N_{ind}} \frac{\gamma_n}{2} \left(\text{Tr} \left\{ \hat{X}_S \hat{\rho}(t) \hat{b}_n^{(j)\dagger} \hat{b}_n^{(j)} \right\} + \text{Tr} \left\{ \hat{X}_S \hat{b}_n^{(j)\dagger} \hat{b}_n^{(j)} \hat{\rho}(t) \right\} \right), \end{aligned} \quad (2.220)$$

avec $\hat{\rho}(t) = \hat{U}(t, t_0) \hat{\rho}(t_0) \hat{U}^\dagger(t, t_0)$. Les propriétés cycliques de la trace ont aussi été utilisées pour placer l'opérateur \hat{X}_S en première position afin de pouvoir par la suite exploiter une autre propriété utile de la trace. Afin d'éliminer le bain dans le calcul de la trace nous utilisons la propriété suivante

$$\text{Tr} \left\{ \hat{X}_S \hat{\rho}(t) \right\} = \text{Tr}_S \left\{ \hat{X}_S \hat{\rho}_S(t) \right\}, \quad (2.221)$$

qui s'applique à n'importe quel opérateur système. L'expression (2.220) se simplifie et donne

$$\begin{aligned} \text{Tr} \left\{ \frac{\partial \hat{X}_S(t)}{\partial t} \hat{\rho}(t_0) \right\} &= \sum_{n=1}^{+\infty} \sum_{j=1}^{N_{ind}} \text{Tr} \left\{ \mathcal{I}_{\emptyset, n}^{(j)} \left(\hat{X}_S(t) \right) \hat{\rho}(t_0) \right\} \\ &+ \text{Tr}_S \left\{ \hat{X}_S \left[-\frac{i}{\hbar} \left[\hat{H}_S, \hat{\rho}_S(t) \right] + \sum_{n=1}^{+\infty} \sum_{j=1}^{N_{ind}} \gamma_n \left(\hat{b}_n^{(j)} \hat{\rho}_S(t) \hat{b}_n^{(j)\dagger} - \frac{1}{2} \left\{ \hat{b}_n^{(j)\dagger} \hat{b}_n^{(j)}, \hat{\rho}_S(t) \right\} \right) \right] \right\}. \end{aligned} \quad (2.222)$$

Le terme faisant intervenir l'opérateur $\mathcal{I}_{\emptyset,n}^{(j)}\left(\hat{X}_S(t)\right)$ peut être éliminé en prenant comme condition initiale $\hat{\rho}_E(t_0) = |\emptyset_{\mathcal{E}}\rangle\langle\emptyset_{\mathcal{E}}|$. Nous avons

$$\begin{aligned} \text{Tr}\left\{\mathcal{I}_{\emptyset,n}^{(j)}\left(\hat{X}_S(t)\right)\hat{\rho}(t_0)\right\} &= \sqrt{\gamma_n}\sum_{k_S,k_{\mathcal{E}}}\langle k_S,k_{\mathcal{E}}|\hat{\rho}(t_0)\hat{c}_{\emptyset,n}^{(j)\dagger}(t)\left[\hat{X}_S(t),\hat{b}_n^{(j)}(t)\right]|k_S,k_{\mathcal{E}}\rangle \\ &\quad - \sqrt{\gamma_n}\sum_{k_S,k_{\mathcal{E}}}\langle k_S,k_{\mathcal{E}}|\left[\hat{X}_S(t),\hat{b}_n^{(j)\dagger}(t)\right]\hat{c}_{\emptyset,n}^{(j)}(t)\hat{\rho}(t_0)|k_S,k_{\mathcal{E}}\rangle, \end{aligned} \quad (2.223)$$

avec $|k_S\rangle$ et $|k_{\mathcal{E}}\rangle$ étant respectivement des vecteurs d'état du système et de l'environnement. D'après la définition (2.206) on voit que l'opérateur $\hat{c}_{\emptyset,n}^{(j)}(t)$ agit uniquement dans l'environnement car il s'exprime uniquement en fonction de l'opérateur $\hat{c}_{\omega,n}^{(j)}$. On peut donc écrire

$$\begin{aligned} \text{Tr}\left\{\mathcal{I}_{\emptyset,n}^{(j)}\left(\hat{X}_S(t)\right)\hat{\rho}(t_0)\right\} &= \sqrt{\gamma_n}\sum_{k_S,k_{\mathcal{E}}}\langle k_{\mathcal{E}}|\hat{\rho}_E(t_0)\hat{c}_{\emptyset,n}^{(j)\dagger}(t)\langle k_S|\hat{\rho}_S(t_0)\left[\hat{X}_S(t),\hat{b}_n^{(j)}(t)\right]|k_S,k_{\mathcal{E}}\rangle \\ &\quad - \sqrt{\gamma_n}\sum_{k_S,k_{\mathcal{E}}}\langle k_S,k_{\mathcal{E}}|\left[\hat{X}_S(t),\hat{b}_n^{(j)\dagger}(t)\right]\hat{\rho}_S(t_0)|k_S\rangle\hat{c}_{\emptyset,n}^{(j)}(t)\hat{\rho}_E(t_0)|k_{\mathcal{E}}\rangle. \end{aligned} \quad (2.224)$$

En utilisant (2.206), on peut déterminer l'action de $\hat{c}_{\emptyset,n}^{(j)}(t)$ sur $\hat{\rho}_E(t_0)$:

$$\hat{c}_{\emptyset,n}^{(j)}(t)\hat{\rho}_E(t_0) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}}\int d\omega\hat{c}_{\omega,n}^{(j)}|\emptyset_{\mathcal{E}}\rangle\langle\emptyset_{\mathcal{E}}|e^{-i\omega(t-t_0)} = 0. \quad (2.225)$$

Ce résultat est le même pour les termes $\hat{\rho}_E(t_0)\hat{c}_{\emptyset,n}^{(j)\dagger}(t)$ et nous indique que

$$\text{Tr}\left\{\mathcal{I}_{\emptyset,n}^{(j)}\left(\hat{X}_S(t)\right)\hat{\rho}(t_0)\right\} = 0 \quad (2.226)$$

Nous reprenons maintenant le calcul du deuxième terme de l'égalité (2.218). D'après la propriété (2.221) celui-ci devient

$$\begin{aligned} \text{Tr}\left\{\hat{X}_S\frac{\partial\hat{\rho}(t)}{\partial t}\right\} &= \text{Tr}_S\left\{\hat{X}_S\frac{\partial\hat{\rho}_S(t)}{\partial t}\right\} \\ &= \text{Tr}_S\left\{\hat{X}_S\left[-\frac{i}{\hbar}\left[\hat{H}_S,\hat{\rho}_S(t)\right] + \sum_{n=1}^{+\infty}\sum_{j=1}^{N_{ind}}\gamma_n\left(\hat{b}_n^{(j)}\hat{\rho}_S(t)\hat{b}_n^{(j)\dagger} - \frac{1}{2}\left\{\hat{b}_n^{(j)\dagger}\hat{b}_n^{(j)},\hat{\rho}_S(t)\right\}\right)\right]\right\}. \end{aligned} \quad (2.227)$$

Enfin, l'équation maîtresse de la matrice densité est obtenue à partir de (2.227) en utilisant la propriété suivante : si $\text{Tr}\{AB\} = \text{Tr}\{AC\}$ pour A quelconque, alors $B = C$. L'équation de Lindblad s'écrit donc

$$\frac{\partial\hat{\rho}_S(t)}{\partial t} = -\frac{i}{\hbar}\left[\hat{H}_S,\hat{\rho}_S(t)\right] + \sum_{n=1}^{+\infty}\sum_{j=1}^{N_{ind}}\gamma_n\left(\hat{b}_n^{(j)}\hat{\rho}_S(t)\hat{b}_n^{(j)\dagger} - \frac{1}{2}\left\{\hat{b}_n^{(j)\dagger}\hat{b}_n^{(j)},\hat{\rho}_S(t)\right\}\right). \quad (2.228)$$

La trace partielle sur l'environnement a eu pour effet d'éliminer l'ensemble des réservoirs constituant celui-ci. Nous retrouvons alors des termes de relaxations associés aux pseudo-modes plasmoniques.

Chapitre 3

Superradiance plasmonique

Sommaire

3.1	Processus collectif d'émission de plusieurs émetteurs quantiques dans le vide	56
3.1.1	Système à deux émetteurs	56
3.1.2	Taux de photons émis	58
3.1.3	Modèle de Dicke	60
3.2	Modèle effectif pour la superradiance plasmonique	62
3.2.1	Régime de couplage faible	62
3.2.2	Émission collective de deux émetteurs	64
3.2.3	Superradiance plasmonique idéale	67
3.3	Exaltation de superradiance par couplage aux plasmons de surface localisés	70
3.3.1	Dynamique d'émission superradiante et rayonnement en champ lointain	70
3.3.2	Base de Dicke étendue	73
3.4	Conclusion	75
3.A	Calcul du taux de photons émis	76
3.B	Construction de l'équation maîtresse en régime de couplage faible	79
3.B.1	Élimination adiabatique	79
3.B.2	Équation maîtresse	81

La superradiance est un phénomène d'émission collective d'un ensemble N_e d'atomes découvert par Robert Henry Dicke en 1954 [80]. Lorsque la distance moyenne entre atome est très inférieure à la longueur d'onde du rayonnement électromagnétique, une cohérence de phase entre les oscillations des dipôles se met en place naturellement et provoque une accélération et une amplification du processus d'émission. Le temps de relaxation et l'intensité du rayonnement sont alors donnés respectivement par $\tau_{N_e} = \tau_1/N_e$ et $I_{N_e} = N_e^2 I_1$ où τ_1 et I_1 sont respectivement le temps de relaxation et l'intensité de l'émission d'un atome indépendant. L'insertion de systèmes dans une cavité optique permet de contrôler la dynamique par le biais du mode de cavité [81, 82]. Ce comportement collectif intervient dans l'amplification de lumière par émission stimulée [83] pour laquelle les atomes se couplent mutuellement à un même mode de cavité induisant un rayonnement très directionnel. La superradiance permet aussi de créer des états de la lumière originaux pouvant mener à des applications telles que des lasers à largeur de raie d'émission ultra-fine ou encore la conception de mémoire quantique [84, 85]. La transposition de ces phénomènes à la plasmonique quantique apparaît dès lors prometteuse pour réaliser une nanosource brillante fortement localisée. Putsovits et Shahbazyan ont mis en évidence une exaltation de l'émission collective d'un ensemble de dipôles couplés à une nanoparticule métallique [86], en considérant une approche classique mais qui ne permet pas de décrire la cascade de Dicke à l'origine de l'émission coopérative. Dans ce chapitre, nous proposons une forme adaptée du modèle effectif au cas du régime de couplage faible qui va nous permettre de traiter cette cascade. Nous commencerons par présenter la superradiance dans le vide pour ensuite montrer que l'ajout d'une nanoparticule métallique peut entraîner une exaltation de superradiance par effet Purcell mais aussi parfois à une extinction de fluorescence par couplage aux modes non-radiatifs de la sphère métallique.

3.1 Processus collectif d'émission de plusieurs émetteurs quantiques dans le vide

Cette section est dédiée à la description de la relaxation radiative d'un ensemble d'émetteurs. Dans un premier temps, nous introduisons le sujet par l'étude d'un système simple constitué de deux émetteurs. Nous verrons que, sous certaines conditions, il existe un phénomène de décroissance collectif qui est due à l'interaction commune des émetteurs avec le champ électromagnétique du vide. Par la suite, nous montrerons comment le phénomène d'émission collectif peut être mis en évidence à travers l'étude du taux de photons émis. Enfin, nous présenterons le modèle de Dicke utilisé pour décrire le transfert de population en cascade.

3.1.1 Système à deux émetteurs

Le système considéré est constitué de deux émetteurs identiques dont la position est donnée par les vecteurs \mathbf{r}_1 et \mathbf{r}_2 comme représenté sur la figure 3.1 (a). Nous décrivons ces émetteurs à l'aide de deux systèmes à deux niveaux dont la fréquence de transition séparant les états fondamentaux $|g_1\rangle, |g_2\rangle$ des états excités $|e_1\rangle, |e_2\rangle$ est notée ω_0 . Nous admettons que les moments dipolaires sont identiques en module, direction et sens. Celui-ci sera noté \mathbf{d} . L'évolution temporelle de cet ensemble est dictée par l'équation maîtresse suivante :

$$\frac{\partial \hat{\rho}(t)}{\partial t} = -\frac{i}{\hbar} [\hat{H}, \hat{\rho}(t)] + \sum_{j,k=1}^2 \gamma_{jk} \left(\hat{\sigma}_-^{(j)} \hat{\rho}(t) \hat{\sigma}_+^{(k)} - \frac{1}{2} \{ \hat{\sigma}_+^{(k)} \hat{\sigma}_-^{(j)}, \hat{\rho}(t) \} \right), \quad (3.1)$$

où les opérateurs de saut quantiques sont définis par $\hat{\sigma}_+^{(j)} = |e_j\rangle\langle g_j|$ et $\hat{\sigma}_-^{(j)} = |g_j\rangle\langle e_j|$. L'Hamiltonien relatif au processus cohérent d'interaction est donné par :

$$\hat{H} = \hbar\omega_0 \left(\hat{\sigma}_+^{(1)} \hat{\sigma}_-^{(1)} + \hat{\sigma}_+^{(2)} \hat{\sigma}_-^{(2)} \right) + \hbar \frac{\Omega_{12}}{2} \left(\hat{\sigma}_+^{(1)} \hat{\sigma}_-^{(2)} + \hat{\sigma}_+^{(2)} \hat{\sigma}_-^{(1)} \right). \quad (3.2)$$

Le couplage effectif Ω_{jk} et le taux de décroissance collectif γ_{jk} peuvent être déterminés à partir du tenseur de Green du vide [87] :

$$(-\Omega_{jk} + i\gamma_{jk}) = \frac{2}{\hbar\epsilon_0} \frac{\omega_0^2}{c^2} \mathbf{d} \cdot \bar{\mathbf{G}}_0(\mathbf{r}_j, \mathbf{r}_k, \omega_0) \cdot \mathbf{d}. \quad (3.3)$$

Dans le cas de figure qui nous intéresse ces paramètres sont donnés par les formules analytiques suivantes :

$$\Omega_{jk} = \frac{3}{2}\gamma_0 \left(\left[\frac{\cos(x)}{x^3} + \frac{\sin(x)}{x^2} - \frac{\cos(x)}{x} \right] + \cos^2(\theta) \left[\frac{\cos(x)}{x} - \frac{3\cos(x)}{x^3} - \frac{3\sin(x)}{x^2} \right] \right) \quad \text{pour } j \neq k, \quad (3.4)$$

$$\gamma_{jk} = \frac{3}{2}\gamma_0 \left(\left[\frac{\sin(x)}{x} - \frac{\sin(x)}{x^3} + \frac{\cos(x)}{x^2} \right] + \cos^2(\theta) \left[\frac{3\sin(x)}{x^3} - \frac{3\cos(x)}{x^2} - \frac{\sin(x)}{x} \right] \right), \quad (3.5)$$

avec $x = (\omega_0/c) |\mathbf{r}_2 - \mathbf{r}_1|$ et γ_0 étant le taux de relaxation dans le vide défini par

$$\gamma_0 = \frac{|\mathbf{d}|^2 \omega_0^3}{3\hbar\pi\epsilon_0 c^3}. \quad (3.6)$$

L'angle entre les vecteurs $\mathbf{r}_2 - \mathbf{r}_1$ et \mathbf{d} est noté θ (voir figure 3.1 (a)). Pour $|\mathbf{r}_2 - \mathbf{r}_1| \rightarrow 0$, le taux de décroissance γ_{12} tend vers γ_0 correspondant au taux d'émission d'un émetteur isolé et le couplage Ω_{12} prend la forme

$$\Omega_{12} = \frac{3}{2}\gamma_0 (1 - 3\cos^2(\theta)) / x^3. \quad (3.7)$$

Pour de grandes distances de séparation $x \gg 1$ ($|\mathbf{r}_2 - \mathbf{r}_1| \gg \lambda$), les deux termes Ω_{12} et γ_{12} tendent vers 0. Le décalage de Lamb associé à chaque émetteur est pris en compte par une renormalisation de la fréquence d'émission ω_0 . La base initialement découplée et les éléments de la matrice densité relatifs aux populations de ces états sont :

$$\begin{cases} |e_1, e_2\rangle & \rightarrow \rho_{ee} \\ |e_1, g_2\rangle & \rightarrow \rho_{eg} \\ |g_1, e_2\rangle & \rightarrow \rho_{ge} \\ |g_1, g_2\rangle & \rightarrow \rho_{gg} \end{cases} \quad (3.8)$$

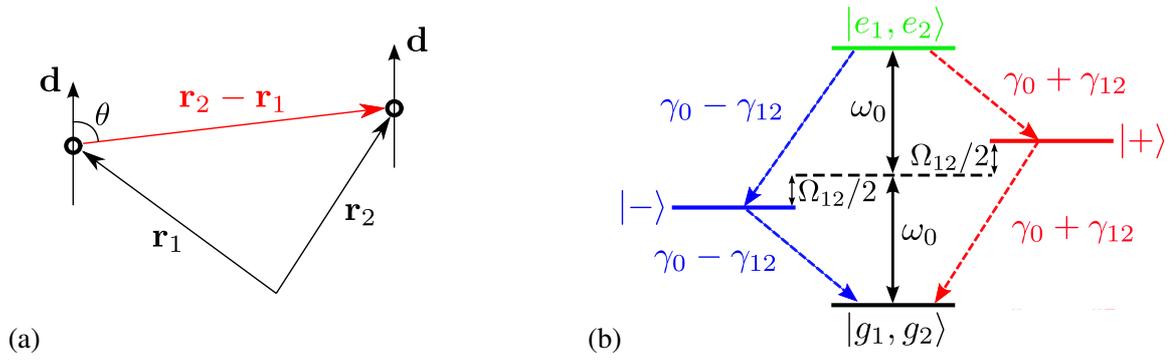


FIGURE 3.1 – (a) Représentation de deux dipôles caractérisés par un moment dipolaire identique \mathbf{d} et séparés d'une distance $|\mathbf{r}_2 - \mathbf{r}_1|$. (b) Schéma de couplage dans la base propre de l'Hamiltonien \hat{H} .

Afin d'étudier la dynamique du système, il est préférable de se placer dans la base des vecteurs propres de l'Hamiltonien \hat{H} :

$$\begin{cases} |e_1, e_2\rangle & \rightarrow \rho_{ee} \\ |+\rangle & = \frac{1}{\sqrt{2}} (|e_1, g_2\rangle + |g_1, e_2\rangle) \rightarrow \rho_+ \\ |-\rangle & = \frac{1}{\sqrt{2}} (|e_1, g_2\rangle - |g_1, e_2\rangle) \rightarrow \rho_- \\ |g_1, g_2\rangle & \rightarrow \rho_{gg} \end{cases} \quad (3.9)$$

où les états $|+\rangle$ et $|-\rangle$ sont respectivement l'état symétrique et l'état antisymétrique du système. La projection de l'équation maîtresse (3.1) sur cette base nous donne les équations différentielles de la dynamique :

$$\partial_t \rho_{ee}(t) = -2\gamma_0 \rho_{ee}(t), \quad (3.10)$$

$$\partial_t \rho_{\pm}(t) = (\gamma_0 \pm \gamma_{12}) \rho_{ee}(t) - (\gamma_0 \pm \gamma_{12}) \rho_{\pm}(t), \quad (3.11)$$

$$\partial_t \rho_{gg}(t) = (\gamma_0 + \gamma_{12}) \rho_+(t) + (\gamma_0 - \gamma_{12}) \rho_-(t). \quad (3.12)$$

La figure 3.1 (b) schématise la dynamique des états propres. L'état à 2 excitations $|e_1, e_2\rangle$ présente un taux d'émission $2\gamma_0$ correspondant à l'émission incohérente des deux émetteurs. La population du système se répartit sur les états symétrique $|+\rangle$ et antisymétrique $|-\rangle$ selon les ratios respectifs $(\gamma_0 + \gamma_{12})/2\gamma_0$ et $(\gamma_0 - \gamma_{12})/2\gamma_0$. Les états $|\pm\rangle$ présentent finalement des taux d'émission $\gamma_0 \pm \gamma_{12}$. Lorsque les deux émetteurs sont suffisamment proches pour que $\gamma_{12} \approx \gamma_0$ alors le régime superradiant est atteint et l'état antisymétrique devient état sombre du système avec un ratio de répartition et un taux d'émission proche de zéro. En effet, l'état superradiant $|+\rangle$ est le seul peuplé (ratio de 1) et émet avec un taux d'émission de $2\gamma_0$, correspondant à l'émission cohérente des émetteurs couplés au même mode électromagnétique. La solution aux équations différentielles régissant la dynamique des populations possèdent des solutions simples :

$$\rho_{ee}(t) = \rho_{ee}(0) e^{-2\gamma_0 t} \quad (3.13)$$

$$\rho_{\pm}(t) = \rho_{\pm}(0) e^{-(\gamma_0 \pm \gamma_{12})t} + \rho_{ee}(0) \frac{\gamma_0 \pm \gamma_{12}}{\gamma_0 \mp \gamma_{12}} \left(e^{-(\gamma_0 \pm \gamma_{12})t} - e^{-2\gamma_0 t} \right) \quad (3.14)$$

$$\begin{aligned} \rho_{gg}(t) &= \rho_+(0) \left(1 - e^{-(\gamma_0 + \gamma_{12})t} \right) + \rho_-(0) \left(1 - e^{-(\gamma_0 - \gamma_{12})t} \right) \\ &+ \rho_{ee}(0) \frac{(\gamma_0 + \gamma_{12})^2}{\gamma_0 - \gamma_{12}} \left[\frac{e^{-2\gamma_0 t} - 1}{2\gamma_0} - \frac{e^{-(\gamma_0 + \gamma_{12})t} - 1}{\gamma_0 + \gamma_{12}} \right] \\ &+ \rho_{ee}(0) \frac{(\gamma_0 - \gamma_{12})^2}{\gamma_0 + \gamma_{12}} \left[\frac{e^{-2\gamma_0 t} - 1}{2\gamma_0} - \frac{e^{-(\gamma_0 - \gamma_{12})t} - 1}{\gamma_0 - \gamma_{12}} \right]. \end{aligned} \quad (3.15)$$

La figure 3.2 nous montre l'évolution du taux de décroissance collectif γ_{12} en fonction de la distance séparant les deux dipôles et l'évolution des populations pour deux régimes distincts en prenant comme condition initiale $\rho_{ee}(0) = 1$. Lorsque les deux dipôles sont éloignés (figure (b)), le taux de décroissance collectif est proche de zéro ($\gamma_{12} \approx 0.002\gamma_0$) comme indiqué sur la figure (a) et les états symétrique et antisymétrique se peuplent et se dépeuplent de manière identique avec un taux proche de γ_0 . Au contraire, si nous considérons maintenant deux

émetteurs suffisamment proche (figure (c)), alors l'état symétrique devient l'état brillant du système. Celui-ci se peuple et se dépeuple avec un taux proche de $2\gamma_0$ et la quasi-totalité de la population du système transite par cet état. L'état antisymétrique, quant à lui, voit sa population globalement petite, faisant de lui l'état sombre du système.

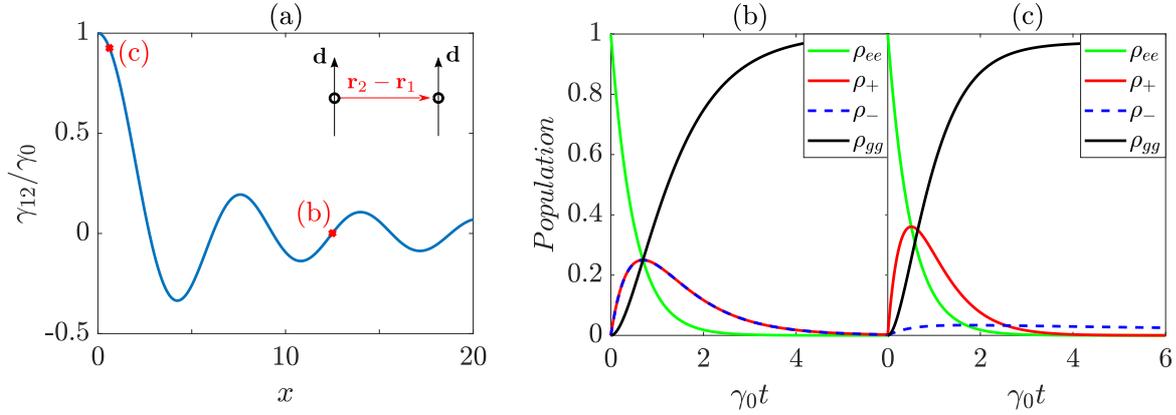


FIGURE 3.2 – (a) Variation du taux γ_{12} en fonction de la distance séparant les deux émetteurs avec $\theta = \pi/2$, $\hbar\omega_0 = 2.77$ eV et $|\mathbf{d}| = 1$ D. Les points rouges indiquent la valeur du taux utilisée pour simuler l'évolution des populations du système visible sur les figures (b) et (c). Le régime superradiant est montré sur la figure (c) pour lequel $|\mathbf{r}_2 - \mathbf{r}_1| = \lambda_0/10$. L'évolution quasi-indépendante des deux émetteurs est montrée sur la figure (b) pour une distance $|\mathbf{r}_2 - \mathbf{r}_1| = 2\lambda_0$.

3.1.2 Taux de photons émis

L'émission coopérative d'un ensemble constitué de N_e émetteurs qui caractérise le phénomène de superradiance peut être mis en évidence à partir de l'étude du taux de photons émis $W(t)$. La conservation d'énergie impose que la désexcitation des émetteurs est compensée par l'augmentation du nombre de photons émis tel que

$$\frac{\partial}{\partial t} \left\langle \sum_{l=1}^{N_e} \hat{\sigma}_+^{(l)} \hat{\sigma}_-^{(l)} \right\rangle = -W(t). \quad (3.16)$$

En s'appuyant sur le résultat de l'annexe 3.A, ce taux est la moyenne quantique de l'opérateur $\hat{\Gamma}$ tel que

$$W(t) = \langle \hat{\Gamma} \rangle, \quad (3.17)$$

$$\hat{\Gamma} = \sum_{j,k=1}^{N_e} \gamma_{jk} \hat{\sigma}_+^{(k)} \hat{\sigma}_-^{(j)}. \quad (3.18)$$

Le taux de décroissance $\Gamma_{|\alpha\rangle}$ d'un quelconque état $|\alpha\rangle$ est donné par l'élément diagonal correspondant de ce nouvel opérateur : $\Gamma_{|\alpha\rangle} = \langle \alpha | \hat{\Gamma} | \alpha \rangle$. Le taux de décroissance collectif $\Gamma_{|\beta\rangle\langle\alpha|}$ entre deux états $|\alpha\rangle$ et $|\beta\rangle$ est quant à lui donné par l'élément non-diagonal $\langle \alpha | \hat{\Gamma} | \beta \rangle$. L'expression du taux $W(t)$, dans la base découplée (3.8), peut être scindée en deux parties :

$$W(t) = W_P(t) + W_C(t). \quad (3.19)$$

Par exemple, dans le cas particulier de deux émetteurs,

$$W_P(t) = (\gamma_{11} + \gamma_{22}) \langle e_1, e_2 | \hat{\rho} | e_1, e_2 \rangle + \gamma_{11} \langle e_1, g_2 | \hat{\rho} | e_1, g_2 \rangle + \gamma_{22} \langle g_1, e_2 | \hat{\rho} | g_1, e_2 \rangle, \quad (3.20)$$

$$W_C(t) = \gamma_{12} (\langle e_1, g_2 | \hat{\rho} | g_1, e_2 \rangle + \langle g_1, e_2 | \hat{\rho} | e_1, g_2 \rangle). \quad (3.21)$$

Le premier terme fait intervenir une somme sur les populations des états du système pondérées par leur taux de décroissance respectif. Le second est associé à une somme sur les termes de cohérence de la matrice densité

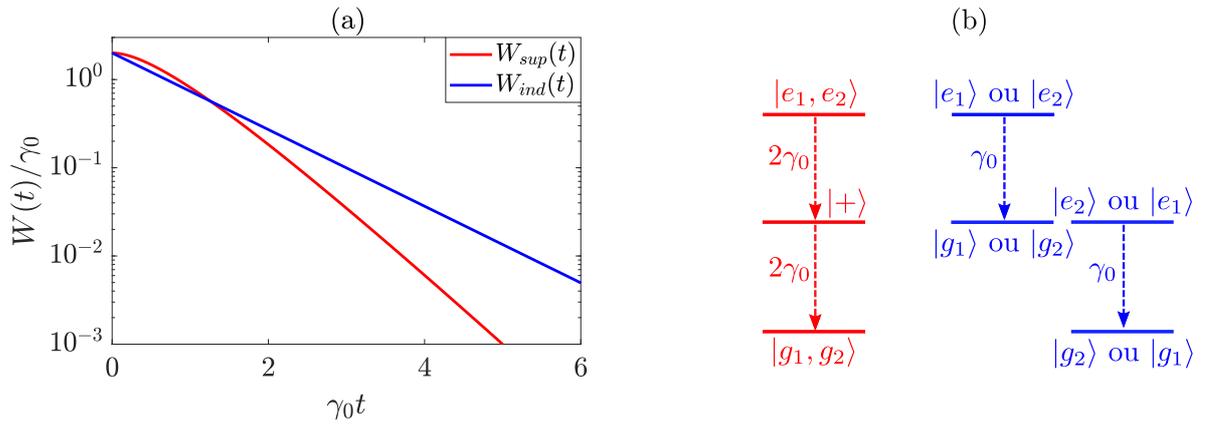


FIGURE 3.3 – (a) Représentation de l'évolution temporelle du taux de photons émis pour deux émetteurs initialement excités. La courbe rouge correspond au régime superradiant caractérisé par $\gamma_{12} = \gamma_0$. L'émission indépendante des deux émetteurs est représentée par la courbe bleue. (b) Représentation équivalente de la cascade radiative pour les deux cas présentés sur la figure (a). Le schéma en rouge montre les états de Dicke pour la superradiance idéale alors que celui en bleu illustre la séparation du processus de relaxation pour deux émetteurs indépendants.

étant eux même pondérés par le taux de décroissance collectif. Dans la base des états propres $|p\rangle$ de l'opérateur $\hat{\Gamma}$, le taux de photons émis prend la forme suivante :

$$W(t) = \sum_p \Gamma_{|p\rangle} \hat{\rho}_p(t). \quad (3.22)$$

Pour deux émetteurs identiques $\gamma_{11} = \gamma_{22} = \gamma_0$, les états propre de l'Hamiltonien (3.9) coïncident avec les états $|p\rangle$ et le taux $W(t)$ s'écrit alors

$$W(t) = \Gamma_{|e_1, e_2\rangle} \rho_{ee}(t) + \Gamma_{|+\rangle} \rho_+(t) + \Gamma_{|-\rangle} \rho_-(t). \quad (3.23)$$

En injectant les expressions des populations (3.13) et (3.14) dans (3.23) avec comme condition initiale $\rho_{ee}(0) = 1$, nous obtenons la forme analytique suivante :

$$W(t) = 2\gamma_0 e^{-2\gamma_0 t} + \frac{(\gamma_0 + \gamma_{12})^2}{\gamma_0 - \gamma_{12}} \left(e^{-(\gamma_0 + \gamma_{12})t} - e^{-2\gamma_0 t} \right) + \frac{(\gamma_0 - \gamma_{12})^2}{\gamma_0 + \gamma_{12}} \left(e^{-(\gamma_0 - \gamma_{12})t} - e^{-2\gamma_0 t} \right). \quad (3.24)$$

Lorsque les émetteurs relaxent de manière indépendante alors γ_{12} est nul. Le taux de photons émis se réduit alors à $W_P(t)$ et vaut d'après (3.24) :

$$W_{ind}(t) = W_P(t) = 2\gamma_0 e^{-\gamma_0 t}. \quad (3.25)$$

Ce taux décroît de manière exponentielle avec un taux γ_0 comme le montre la courbe bleue de la figure 3.3 (a). Il peut être interprété comme étant la somme des taux $W_1(t) = \gamma_0 e^{-\gamma_0 t}$ des deux émetteurs pris séparément. Il est d'ailleurs possible de montrer que ce taux prend la valeurs $N_e W_1(t)$ dans le cas général de N_e émetteurs. Si l'on considère maintenant le régime superradiant caractérisé par $\gamma_{12} = \gamma_0$, le terme de cohérence $W_C(t)$ vient se rajouter et provoque le pic d'émission visible sur la courbe rouge de la figure 3.3 (a). Le nouveau taux prend la valeur

$$W_{sup}(t) = 2\gamma_0 e^{-2\gamma_0 t} + 4\gamma_0^2 e^{-\gamma_0 t} \lim_{\gamma_{12} \rightarrow \gamma_0} \frac{e^{-\gamma_{12}t} - e^{-\gamma_0 t}}{\gamma_0 - \gamma_{12}}, \quad (3.26)$$

dont la limite est déterminée à l'aide de la règle de Bernoulli

$$\lim_{x \rightarrow a} \frac{f(x)}{g(x)} = \frac{f'(a)}{g'(a)}. \quad (3.27)$$

Nous trouvons finalement

$$W_{sup}(t) = 2\gamma_0 e^{-2\gamma_0 t} (1 + 2\gamma_0 t), \quad (3.28)$$

montrant bien le caractère superradiant associé à une décroissance exponentielle globale avec un taux de $2\gamma_0$.

La prochaine sous-section est dédiée à la description du modèle de Dicke, permettant de décrire simplement la cascade radiative menant au phénomène de superradiance dans le cas d'un nombre d'émetteurs quelconque.

3.1.3 Modèle de Dicke

Dans un premier temps, nous nous restreignons à une équation maîtresse pour laquelle l'évolution temporelle de la matrice densité est déterminée uniquement par le dissipateur. En considérant la configuration pour laquelle la distance entre les émetteurs est très inférieure à la longueur d'onde d'émission, alors $\gamma_{jk} = \gamma_0 \forall j, k$, et :

$$\frac{\partial \hat{\rho}(t)}{\partial t} = \sum_{j,k=1}^{N_e} \gamma_0 \left(\hat{\sigma}_-^{(j)} \hat{\rho}(t) \hat{\sigma}_+^{(k)} - \frac{1}{2} \left\{ \hat{\sigma}_+^{(k)} \hat{\sigma}_-^{(j)}, \hat{\rho}(t) \right\} \right). \quad (3.29)$$

Cette équation est invariante par permutation des émetteurs du fait que le facteur γ_0 ne dépende pas des indices j et k . Intuitivement, nous pouvons comprendre cette invariance en remarquant que lors d'un processus d'émission de photon, il est impossible de savoir lequel des émetteurs en est responsable car la distance entre ces derniers est bien inférieure à la longueur d'onde d'émission. De ce fait, l'équation maîtresse peut s'écrire sous la forme Lindbladienne :

$$\frac{\partial \hat{\rho}(t)}{\partial t} = \gamma_0 \left(\hat{J}_- \hat{\rho}(t) \hat{J}_+ - \frac{1}{2} \left\{ \hat{J}_+ \hat{J}_-, \hat{\rho}(t) \right\} \right), \quad (3.30)$$

où les opérateurs d'échelle de spin collectif sont définis par

$$\hat{J}_\pm = \sum_{j=1}^{N_e} \hat{\sigma}_\pm^{(j)}. \quad (3.31)$$

Lorsque les émetteurs sont initialement tous excités, l'état initial $|ee \cdots ee\rangle$ correspondant est invariant par permutation et respecte donc la symétrie du Lindbladien (3.30). De par ce fait, les états qui interviendront dans la dynamique respecteront aussi cette symétrie et vont pouvoir être construits en appliquant successivement l'opérateur de spin collectif \hat{J}_- sur l'état initial comme suit

$$|J, M\rangle = \sqrt{\frac{(J+M)!}{N_e! (J-M)!}} \hat{J}_-^{J-M} |ee \cdots ee\rangle. \quad (3.32)$$

Cet ensemble d'états symétriques est défini par l'indice $J = N_e/2$ et comprend un nombre $2J+1$ états d'indice M allant de $-J$ à J par pas de 1. Le facteur devant \hat{J}_- dans (3.32) assure la normalisation des états $|J, M\rangle$. Pour un état d'indice M donné, l'état symétrique $|J, M\rangle$ correspondant est une superposition des états de la base découplée avec $J+M$ émetteurs excités. On a par exemple

$$|J, J-1\rangle = \frac{1}{\sqrt{N_e}} (|gee \cdots ee\rangle + |ege \cdots ee\rangle + \cdots + |eee \cdots ge\rangle + |eee \cdots eg\rangle). \quad (3.33)$$

Les équations différentielles régissant la dynamique des populations des états de Dicke peuvent être déterminées en projetant l'équation (3.30) sur les états $|J, M\rangle$ en sachant que

$$\hat{J}_\pm |J, M\rangle = \sqrt{J(J+1) - M(M \pm 1)} |J, M \pm 1\rangle. \quad (3.34)$$

Nous obtenons

$$\frac{\partial \rho_M(t)}{\partial t} = \gamma_0 [J(J+1) - M(M+1)] \rho_{M+1}(t) - \gamma_0 [J(J+1) - M(M-1)] \rho_M(t), \quad (3.35)$$

où $\rho_M(t) = \langle J, M | \hat{\rho}(t) | J, M \rangle$ est la population de l'état $|J, M\rangle$. L'ensemble des $2J + 1$ équations (3.35) décrit bien une cascade d'émission qui, partant de la condition initiale $|\psi(t)\rangle = |ee \cdots e\rangle = |J, J\rangle$, fait successivement passer le système par les états symétriques $|J, M\rangle$ avec $M = J - 1, J - 2, \dots, -J + 1$, pour aboutir, quand $t \rightarrow \infty$, à l'état $|J, -J\rangle = |gg \cdots g\rangle$ (voir figure 3.5). Le taux de décroissance associé à l'état d'indice M et noté Γ_M est donné par le facteur devant le terme $\rho_M(t)$ dans l'équation des populations (3.35). Il est directement proportionnel au nombre d'émetteurs excités (donné par $J + M$) et au nombre d'émetteurs dans l'état fondamental (donné par $J - M$) :

$$\Gamma_M = \langle J, M | \hat{\Gamma} | J, M \rangle = \gamma_0 \langle J, M | \hat{J}_+ \hat{J}_- | J, M \rangle = \gamma_0 (J + M)(J - M + 1). \quad (3.36)$$

Notons que ce taux prend la valeur $N_e \Gamma$ pour $M = J$, qu'il augmente fortement jusqu'à $M = 0$ (ou $+1/2$ et $-1/2$ pour N_e impair) et devient alors de l'ordre de N_e^2 (si $N_e \gg 1$) pour enfin diminuer et devenir nul lorsque M tend vers $-J$. Le taux de photons émis défini ici par $W(t) = \sum_{M=-J}^J \Gamma_M \rho_M(t)$ va alors augmenter fortement et provoquer un pic d'émission d'autant plus important que le nombre d'émetteur N_e est grand (voir sur la figure 3.4). Ce pic d'émission caractérise la construction cohérente au cours de la cascade superradiante le long des états de Dicke. Sa durée caractéristique est de l'ordre de τ_1/N_e avec $\tau_1 = 2\pi/\Gamma_1$. Pour représenter

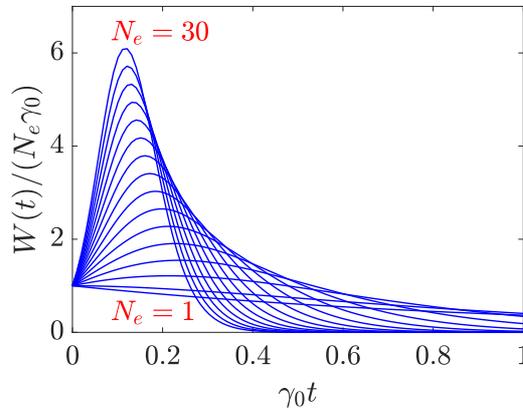


FIGURE 3.4 – Taux de photons émis pour un nombre d'émetteurs allant de 1 à 30.

la cascade superradiante, considérons l'évolution cohérente de la matrice densité, donnée par le commutateur $-(i/\hbar) [\hat{H}, \hat{\rho}]$. La fréquence angulaire Ω_{jk} ne dépend pas des indices j et k pour un ensemble d'émetteurs indiscernables ($\Omega_{jk} = \Omega \forall j, k$) et l'Hamiltonien s'écrit alors

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{H}_{dip}, \quad (3.37)$$

$$\hat{H}_0 = \hbar\omega_0 \sum_{j=1}^{N_e} \hat{\sigma}_+^{(j)} \hat{\sigma}_-^{(j)}, \quad (3.38)$$

$$\hat{H}_{dip} = \hbar \frac{\Omega}{2} \sum_{j,k \neq j}^{N_e} \hat{\sigma}_+^{(j)} \hat{\sigma}_-^{(k)}. \quad (3.39)$$

\hat{H}_0 est l'Hamiltonien associé aux émetteurs isolés et l'interaction dipolaire due à leurs proximité est prise en compte dans l'Hamiltonien \hat{H}_{dip} . Les états de Dicke $|J, M\rangle$ sont états propres de ces deux Hamiltoniens tels que

$$\hat{H}_0 |J, M\rangle = \hbar\omega_0 (J + M) |J, M\rangle, \quad (3.40)$$

$$\hat{H}_{dip} |J, M\rangle = \hbar \frac{\Omega}{2} (J + M)(J - M) |J, M\rangle. \quad (3.41)$$

L'interaction dipolaire entraîne donc un simple décalage de Lamb $\Delta_M = \frac{\Omega}{2} (J + M)(J - M)$ des états propres de l'Hamiltonien découplé \hat{H}_0 comme illustré sur la figure 3.5. La valeur de la fréquence Ω étant très inférieure à ω_0 malgré la proximité des émetteurs, ce décalage peut être négligé en général.

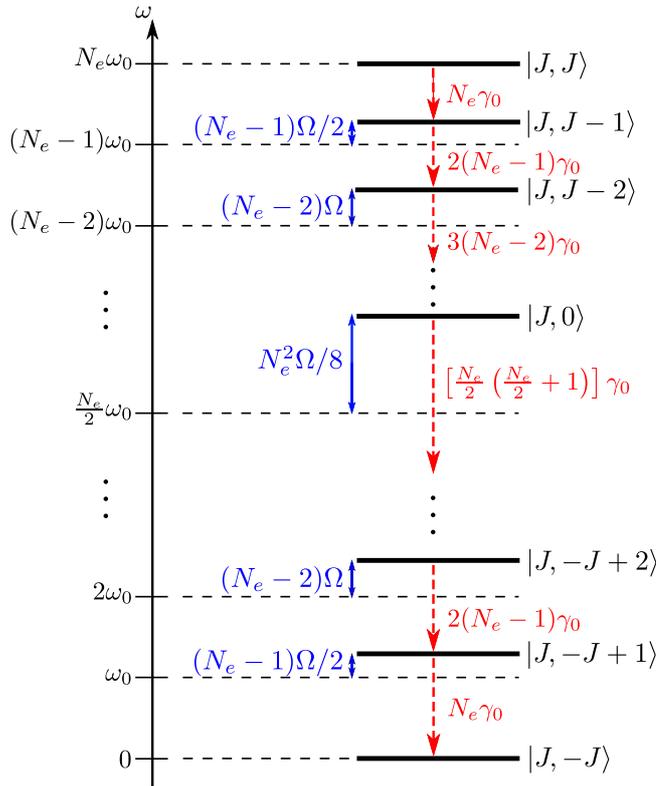


FIGURE 3.5 – Représentation de la cascade radiative sur la base des états de Dicke pour un nombre pair d'émetteurs. L'axe de gauche indique les valeurs propres de l'Hamiltonien \hat{H}_0 . Les taux de décroissances Γ_M liant chaque état sont indiqués en rouge et les décalages de Lamb Δ_M résultant de l'interaction dipolaire sont représentés en bleu.

3.2 Modèle effectif pour la superradiance plasmonique

L'introduction d'une structure métallique au sein d'un ensemble d'émetteurs peut entraîner une accélération du processus collectif d'émission qui résulte du couplage mutuel aux plasmons de surface localisés. Nous commencerons par dériver l'équation maîtresse sur laquelle repose le processus de relaxation d'un ensemble d'émetteurs situés à proximité d'une nanoparticule métallique. Par la suite, nous étudierons un système simple de deux émetteurs couplés pour enfin présenter la superradiance plasmonique idéale et les conditions imposées par la géométrie des modes plasmoniques de la nanoparticule.

3.2.1 Régime de couplage faible

Pour commencer, nous reprenons l'Hamiltonien (2.138) présenté au chapitre 2 :

$$\hat{H}_{SE} = \hat{H}_S + \hat{H}_E + \hat{H}_{SE}^{(I)}, \quad (3.42)$$

$$\hat{H}_S = \sum_{n=1}^{+\infty} \hbar \delta_n \sum_{j=1}^{N_{ind}} \hat{b}_n^{(j)\dagger} \hat{b}_n^{(j)} + \hbar \sum_{l=1}^{N_e} \sum_{n=1}^{+\infty} \sum_{j=1}^{N_{ind}} \left(g_n^{(lj)} \hat{\sigma}_+^{(l)} \hat{b}_n^{(j)} + \left(g_n^{(lj)} \right)^* \hat{b}_n^{(j)\dagger} \hat{\sigma}_-^{(l)} \right), \quad (3.43)$$

$$\hat{H}_E = \int d\omega \hbar \omega \sum_{n=1}^{+\infty} \sum_{j=1}^{N_{ind}} \hat{c}_{\omega,n}^{(j)\dagger} \hat{c}_{\omega,n}^{(j)}, \quad (3.44)$$

$$\hat{H}_{SE}^{(I)} = i\hbar \int d\omega \sum_{n=1}^{+\infty} \sum_{j=1}^{N_{ind}} \beta_n^{(j)}(\omega) \left(\hat{c}_{\omega,n}^{(j)\dagger} \hat{b}_n^{(j)} - \hat{b}_n^{(j)\dagger} \hat{c}_{\omega,n}^{(j)} \right). \quad (3.45)$$

Le premier terme \hat{H}_S décrit les échanges d'énergie au sein d'un système comprenant un ensemble d'émetteurs couplés à des quasi-modes plasmoniques représentés par les opérateurs de Löwdin $\hat{b}_n^{(j)}$. L'écart à la résonance entre les émetteurs et les modes plasmoniques est donné par $\delta_n = \omega_n - \omega_0$. Le couplage de l'émetteur l

avec le mode de Löwdin j est noté $g_n^{(lj)}$ (voir sous-section 2.3.2). Les continua de fréquences associés aux quasi-modes constituent l'environnement et leurs énergies sont regroupées dans l'Hamiltonien \hat{H}_E . L'interaction entre le système et l'environnement est donnée par $\hat{H}_{SE}^{(I)}$. Ce dernier englobe l'ensemble des couplages $\beta_n^{(j)}$ entre les continua plats de l'environnement et les quasi-modes plasmoniques. Le Lindbladien (2.144) découlant directement de cet Hamiltonien entraîne une dynamique qui peut être difficile à calculer dès lors que le nombre de modes à prendre en compte et le nombre d'émetteurs deviennent importants. Nous allons donc nous restreindre dans cette étude au cas où les émetteurs sont faiblement couplés aux modes plasmoniques. Ce régime de couplage faible est caractérisé par

$$\sqrt{\sum_{n=1}^{+\infty} \frac{\sum_{l=1}^{N_e} (g_n^{(l)})^2}{\delta_n^2 + (\frac{\gamma_n}{2})^2}} \ll 1, \quad (3.46)$$

avec $g_n^{(l)}$ le couplage d'un émetteur isolé d'indice l et γ_n les pertes du pseudo-mode d'ordre n . L'inégalité (3.46) est similaire au critère utilisé dans la littérature pour un émetteur isolé couplé à un mode de cavité ($2g/\gamma \ll 1$) mais étendu au cas de plusieurs émetteurs couplés à de nombreux modes plasmoniques. Dans ce régime, il est possible d'éliminer adiabatiquement le sous-espace lié aux excitations des modes plasmoniques car très peu de population transitera à l'intérieur de celui-ci. L'annexe 3.B détaille comment cette élimination adiabatique est effectuée pour ensuite permettre la construction de l'équation maîtresse effective associée à l'Hamiltonien (3.42). Nous obtenons :

$$\frac{d\hat{\rho}(t)}{dt} = \sum_{j=1}^{N_e} \sum_{k=1}^{N_e} -i [\hat{H}'_{jk}, \hat{\rho}(t)] + \mathcal{D}_{jk} [\hat{\rho}(t)], \quad \text{avec} \quad (3.47)$$

$$\hat{H}'_{jk} = -\Delta_{jk} \hat{\sigma}_+^{(k)} \hat{\sigma}_-^{(j)}, \quad (3.48)$$

$$\mathcal{D}_{jk} [\hat{\rho}(t)] = \Gamma_{jk} \left[\hat{\sigma}_-^{(j)} \hat{\rho}(t) \hat{\sigma}_+^{(k)} - \frac{1}{2} \left(\hat{\sigma}_+^{(k)} \hat{\sigma}_-^{(j)} \hat{\rho}(t) + \hat{\rho}(t) \hat{\sigma}_+^{(k)} \hat{\sigma}_-^{(j)} \right) \right]. \quad (3.49)$$

L'équation maîtresse se décompose selon une double somme sur les indices j et k associés aux émetteurs. Sa structure est très similaire à celle des équations (3.1) et (3.2) de la superradiance dans le vide. Pour chaque couple d'indice (j, k) , il existe un Hamiltonien H_{jk} et un dissipateur $\mathcal{D}_{jk} [\hat{\rho}(t)]$ faisant intervenir les termes

$$\Delta_{jk} = \sum_{n=1}^{+\infty} \frac{\delta_n}{\delta_n^2 + (\frac{\gamma_n}{2})^2} \sum_{i=1}^{N_e} (g_n^{(ji)})^* g_n^{(ki)}, \quad (3.50)$$

$$\Gamma_{jk} = \sum_{n=1}^{+\infty} \frac{\gamma_n}{\delta_n^2 + (\frac{\gamma_n}{2})^2} \sum_{i=1}^{N_e} (g_n^{(ji)})^* g_n^{(ki)}. \quad (3.51)$$

En utilisant l'expression des couplages (2.133) et en tenant compte de la relation

$$\mu_n^{(jk)} = \sum_{i=1}^{N_e} T_n^{(ji)} \lambda_n^{(i)} (T_n^{(ki)})^*, \quad (3.52)$$

découlant de la diagonalisation de la matrice de recouvrement (2.72), les expressions (3.50) et (3.51) deviennent

$$\Delta_{jk} = \sum_{n=1}^{+\infty} \frac{\delta_n}{\delta_n^2 + (\frac{\gamma_n}{2})^2} g_n^{(j)} g_n^{(k)} \mu_n^{(jk)}, \quad (3.53)$$

$$\Gamma_{jk} = \sum_{n=1}^{+\infty} \frac{\gamma_n}{\delta_n^2 + (\frac{\gamma_n}{2})^2} g_n^{(j)} g_n^{(k)} \mu_n^{(jk)}, \quad (3.54)$$

avec $\mu_n^{(jk)}$ étant la fonction de recouvrement dont on rappelle ici l'expression :

$$\mu_n^{(jk)} = \frac{\gamma_n \omega_n^2 \mathbf{d}^{(j)} \cdot \Im [\mathbf{G}_n(\mathbf{r}_j, \mathbf{r}_k, \omega_n)] \cdot \mathbf{d}^{(k)}}{2\hbar\epsilon_0 c^2 g_n^{(j)} g_n^{(k)}}. \quad (3.55)$$

Les termes Δ_{jj} et Γ_{jj} représentent respectivement le décalage de Lamb et les pertes de l'émetteur j dues à son interaction avec la nano-particule en l'absence des autres émetteurs et sont donnés par

$$\Delta_{jj} = \sum_{n=1}^{+\infty} \frac{\delta_n}{\delta_n^2 + \left(\frac{\gamma_n}{2}\right)^2} \left(g_n^{(j)}\right)^2 = \Delta_j, \quad (3.56)$$

$$\Gamma_{jj} = \sum_{n=1}^{+\infty} \frac{\gamma_n}{\delta_n^2 + \left(\frac{\gamma_n}{2}\right)^2} \left(g_n^{(j)}\right)^2 = \Gamma_j. \quad (3.57)$$

Pour $j \neq k$, ces mêmes termes caractérisent un transfert de population cohérent et un taux de décroissance collectif entre émetteurs. Notons que $\Gamma_{jk} = \Gamma_{kj}$ et $\Delta_{jk} = \Delta_{kj}$ du fait que $\mu_n^{(jk)} = \mu_n^{(kj)}$. Si la fonction de recouvrement suit un profil spectral Lorentzien (approximation (2.131)), nous retrouvons l'expression du taux Γ_{jk} valable en régime de couplage faible :

$$\Gamma_{jk} = \frac{2}{\hbar \varepsilon_0} \frac{\omega_0^2}{c^2} \mathbf{d}^{(j)} \cdot \Im [\mathbf{G}(\mathbf{r}_j, \mathbf{r}_k, \omega_0)] \cdot \mathbf{d}^{(k)}. \quad (3.58)$$

3.2.2 Émission collective de deux émetteurs

Afin de montrer une application simple du modèle effectif discuté dans la sous-section précédente et de mettre en évidence les analogies avec la superradiance dans le vide, nous commençons par l'étude d'un système constitué de deux émetteurs couplés à la nanoparticule. L'Hamiltonien et le dissipateur de l'équation maîtresse (3.47) s'écrivent ainsi

$$\begin{aligned} \hat{H}' &= - \left[\Delta_1 \hat{\sigma}_+^{(1)} \hat{\sigma}_-^{(1)} + \Delta_2 \hat{\sigma}_+^{(2)} \hat{\sigma}_-^{(2)} + \Delta_{12} \left(\hat{\sigma}_+^{(1)} \hat{\sigma}_-^{(2)} + \hat{\sigma}_+^{(2)} \hat{\sigma}_-^{(1)} \right) \right], \quad (3.59) \\ \mathcal{D}[\hat{\rho}(t)] &= \Gamma_1 \left[\hat{\sigma}_-^{(1)} \hat{\rho}(t) \hat{\sigma}_+^{(1)} - \frac{1}{2} \left(\hat{\sigma}_+^{(1)} \hat{\sigma}_-^{(1)} \hat{\rho}(t) + \hat{\rho}(t) \hat{\sigma}_+^{(1)} \hat{\sigma}_-^{(1)} \right) \right] \\ &+ \Gamma_2 \left[\hat{\sigma}_-^{(2)} \hat{\rho}(t) \hat{\sigma}_+^{(2)} - \frac{1}{2} \left(\hat{\sigma}_+^{(2)} \hat{\sigma}_-^{(2)} \hat{\rho}(t) + \hat{\rho}(t) \hat{\sigma}_+^{(2)} \hat{\sigma}_-^{(2)} \right) \right] \\ &+ \Gamma_{12} \left[\hat{\sigma}_-^{(1)} \hat{\rho}(t) \hat{\sigma}_+^{(2)} - \frac{1}{2} \left(\hat{\sigma}_+^{(2)} \hat{\sigma}_-^{(1)} \hat{\rho}(t) + \hat{\rho}(t) \hat{\sigma}_+^{(2)} \hat{\sigma}_-^{(1)} \right) \right] \\ &+ \Gamma_{12} \left[\hat{\sigma}_-^{(2)} \hat{\rho}(t) \hat{\sigma}_+^{(1)} - \frac{1}{2} \left(\hat{\sigma}_+^{(1)} \hat{\sigma}_-^{(2)} \hat{\rho}(t) + \hat{\rho}(t) \hat{\sigma}_+^{(1)} \hat{\sigma}_-^{(2)} \right) \right]. \quad (3.60) \end{aligned}$$

La dynamique des populations dans la base $\{|ee\rangle, |eg\rangle, |ge\rangle, |gg\rangle\}$ est définie par le système d'équation

$$\partial_t \rho_{ee}(t) = -(\Gamma_1 + \Gamma_2) \rho_{ee}(t), \quad (3.61)$$

$$\begin{aligned} \partial_t \rho_{eg}(t) &= -\Gamma_1 \rho_{eg}(t) + \Gamma_2 \rho_{ee}(t) - \frac{\Gamma_{12}}{2} (\langle ge|\hat{\rho}(t)|eg\rangle + \langle eg|\hat{\rho}(t)|ge\rangle) \\ &+ i\Delta_{12} (\langle ge|\hat{\rho}(t)|eg\rangle - \langle eg|\hat{\rho}(t)|ge\rangle), \quad (3.62) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \partial_t \rho_{ge}(t) &= -\Gamma_2 \rho_{ge}(t) + \Gamma_1 \rho_{ee}(t) - \frac{\Gamma_{12}}{2} (\langle ge|\hat{\rho}(t)|eg\rangle + \langle eg|\hat{\rho}(t)|ge\rangle) \\ &- i\Delta_{12} (\langle ge|\hat{\rho}(t)|eg\rangle - \langle eg|\hat{\rho}(t)|ge\rangle), \quad (3.63) \end{aligned}$$

$$\partial_t \rho_{gg}(t) = \Gamma_1 \rho_{eg}(t) + \Gamma_2 \rho_{ge}(t) + \Gamma_{12} (\langle ge|\hat{\rho}(t)|eg\rangle + \langle eg|\hat{\rho}(t)|ge\rangle). \quad (3.64)$$

Sous certaines conditions ($\Gamma_1 = \Gamma_2$ et $\Gamma_{12} = \sqrt{\Gamma_1 \Gamma_2}$), ce système couplé peut être représenté sur la base d'opérateurs symétriques et anti-symétriques diagonalisant la partie dissipative de l'équation de Linblad [88]. Ces opérateurs sont le résultat d'une transformation unitaire des moments dipolaires des émetteurs et prennent la forme d'une combinaison linéaire des opérateurs $\hat{\sigma}_\pm^{(1)}$ et $\hat{\sigma}_\pm^{(2)}$:

$$\hat{\sigma}_+^S = \sqrt{\frac{\Gamma_1}{\Gamma_1 + \Gamma_2}} \hat{\sigma}_+^{(1)} + \sqrt{\frac{\Gamma_2}{\Gamma_1 + \Gamma_2}} \hat{\sigma}_+^{(2)}, \quad (3.65)$$

$$\hat{\sigma}_+^A = \sqrt{\frac{\Gamma_2}{\Gamma_1 + \Gamma_2}} \hat{\sigma}_+^{(1)} - \sqrt{\frac{\Gamma_1}{\Gamma_1 + \Gamma_2}} \hat{\sigma}_+^{(2)}. \quad (3.66)$$

Le dissipateur (3.60) s'écrit alors

$$\begin{aligned}
 \mathcal{D}[\hat{\rho}(t)] = & \Gamma_S \left[\hat{\sigma}_-^{(S)} \hat{\rho}(t) \hat{\sigma}_+^{(S)} - \frac{1}{2} \left(\hat{\sigma}_+^{(S)} \hat{\sigma}_-^{(S)} \hat{\rho}(t) + \hat{\rho}(t) \hat{\sigma}_+^{(S)} \hat{\sigma}_-^{(S)} \right) \right] \\
 & + \Gamma_A \left[\hat{\sigma}_-^{(A)} \hat{\rho}(t) \hat{\sigma}_+^{(A)} - \frac{1}{2} \left(\hat{\sigma}_+^{(A)} \hat{\sigma}_-^{(A)} \hat{\rho}(t) + \hat{\rho}(t) \hat{\sigma}_+^{(A)} \hat{\sigma}_-^{(A)} \right) \right] \\
 & + \Gamma_{SA} \left[\hat{\sigma}_-^{(A)} \hat{\rho}(t) \hat{\sigma}_+^{(S)} - \frac{1}{2} \left(\hat{\sigma}_+^{(S)} \hat{\sigma}_-^{(A)} \hat{\rho}(t) + \hat{\rho}(t) \hat{\sigma}_+^{(S)} \hat{\sigma}_-^{(A)} \right) \right] \\
 & + \Gamma_{SA} \left[\hat{\sigma}_-^{(S)} \hat{\rho}(t) \hat{\sigma}_+^{(A)} - \frac{1}{2} \left(\hat{\sigma}_+^{(A)} \hat{\sigma}_-^{(S)} \hat{\rho}(t) + \hat{\rho}(t) \hat{\sigma}_+^{(A)} \hat{\sigma}_-^{(S)} \right) \right], \tag{3.67}
 \end{aligned}$$

avec

$$\Gamma_S = \frac{\Gamma_1^2 + \Gamma_2^2 + 2\Gamma_{12}\sqrt{\Gamma_1\Gamma_2}}{\Gamma_1 + \Gamma_2}, \tag{3.68}$$

$$\Gamma_A = \frac{2\sqrt{\Gamma_1\Gamma_2}(\sqrt{\Gamma_1\Gamma_2} - \Gamma_{12})}{\Gamma_1 + \Gamma_2}, \tag{3.69}$$

$$\Gamma_{SA} = \frac{(\Gamma_1 - \Gamma_2)(\sqrt{\Gamma_1\Gamma_2} - \Gamma_{12})}{\Gamma_1 + \Gamma_2}. \tag{3.70}$$

Lorsque les taux de décroissances des deux émetteurs pris séparément sont égaux ($\Gamma_2 = \Gamma_1$) alors Γ_{SA} est nul et les états symétrique $|S\rangle = \hat{\sigma}_-^S|ee\rangle$ et antisymétrique $|A\rangle = \hat{\sigma}_-^A|ee\rangle$ décroissent indépendamment avec les taux respectifs $\Gamma_S = \Gamma_1 + \Gamma_{12}$ et $\Gamma_A = \Gamma_1 - \Gamma_{12}$. De plus, si $\Gamma_{12} = \sqrt{\Gamma_1\Gamma_2} = \Gamma_1$ alors l'état antisymétrique peut être retiré du système et on se ramène au cas idéal de la superradiance où la totalité de la population du système transite de l'état $|ee\rangle$ vers l'état symétrique $|S\rangle$ puis enfin vers l'état $|gg\rangle$. À noter que pour $\Gamma_{12} = -\Gamma_1$, c'est l'état symétrique qui devient sombre. Le signe de Γ_{12} détermine le vecteur brillant de l'ensemble des états de Dicke pour $M = 0$. Le changement de représentation du Lindbladien permet de voir la contribution des taux de décroissance collectif visibles dans les équations (3.62) et (3.63) comme une augmentation (ou une diminution) du taux de décroissance des états symétrique et antisymétrique.

La partie cohérente (3.59) de l'équation de Linblad s'exprime selon les opérateurs symétrique et antisymétrique :

$$\hat{H}' = - \left[\Delta_S \hat{\sigma}_+^{(S)} \hat{\sigma}_-^{(S)} + \Delta_A \hat{\sigma}_+^{(A)} \hat{\sigma}_-^{(A)} + \Delta_{SA} \left(\hat{\sigma}_+^{(S)} \hat{\sigma}_-^{(A)} + \hat{\sigma}_+^{(A)} \hat{\sigma}_-^{(S)} \right) \right], \tag{3.71}$$

avec

$$\Delta_S = \frac{\Delta_1\Gamma_1 + \Delta_2\Gamma_2 + 2\Delta_{12}\sqrt{\Gamma_1\Gamma_2}}{\Gamma_1 + \Gamma_2}, \tag{3.72}$$

$$\Delta_A = \frac{\Delta_1\Gamma_2 + \Delta_2\Gamma_1 - 2\Delta_{12}\sqrt{\Gamma_1\Gamma_2}}{\Gamma_1 + \Gamma_2}, \tag{3.73}$$

$$\Delta_{SA} = \frac{\sqrt{\Gamma_1\Gamma_2}(\Delta_1 - \Delta_2) - \Delta_{12}(\Gamma_1 - \Gamma_2)}{\Gamma_1 + \Gamma_2}. \tag{3.74}$$

L'hamiltonien \hat{H}' décrit un schéma d'interaction en tout point similaire à celui donné par le dissipateur $\mathcal{D}[\hat{\rho}(t)]$. La différence fondamentale qui les distingue est que le premier traduit un comportement oscillant réversible alors que le second décrit un comportement de relaxation irréversible. C'est pour cela que la transformation (3.65),(3.66) diagonalise de la même manière l'hamiltonien \hat{H}' . On remarque en effet que l'expression des fréquences d'oscillations (3.72), (3.73) et (3.74) sont très similaires à l'expression des taux de décroissances (3.68),(3.69) et (3.70). Nous allons nous attarder maintenant sur le cas où l'interaction entre la sphère et chaque émetteur pris séparément est identique, ce qui se traduit par l'égalité suivante : $g_n^{(1)} = g_n^{(2)}$ quelque soit n . Compte tenu de la définition des fonctions de couplage (2.52), cette considération induit que les émetteurs sont équidistants par rapport à la surface de la sphère métallique et que leurs moments dipolaires ont la même orientation. D'après les formules (3.56) et (3.57) on en déduit que $\Delta_2 = \Delta_1$ et $\Gamma_2 = \Gamma_1$. Un tel système peut

se décomposer sur la base des états $\{|ee\rangle, |S\rangle, |A\rangle, |gg\rangle\}$ où

$$|S\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} (|ge\rangle + |eg\rangle), \quad (3.75)$$

$$|A\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} (|ge\rangle - |eg\rangle), \quad (3.76)$$

et les populations sont régies par le système d'équations différentielles suivant

$$\partial_t \rho_{ee}(t) = -2\Gamma_1 \rho_{ee}(t), \quad (3.77)$$

$$\partial_t \rho_S(t) = (\Gamma_1 + \Gamma_{12}) \rho_{ee}(t) - (\Gamma_1 + \Gamma_{12}) \rho_S(t), \quad (3.78)$$

$$\partial_t \rho_A(t) = (\Gamma_1 - \Gamma_{12}) \rho_{ee}(t) - (\Gamma_1 - \Gamma_{12}) \rho_A(t), \quad (3.79)$$

$$\partial_t \rho_{gg}(t) = (\Gamma_1 + \Gamma_{12}) \rho_S(t) + (\Gamma_1 - \Gamma_{12}) \rho_A(t). \quad (3.80)$$

Ce dernier est très similaire à celui constitué des équations (3.10), (3.11) et (3.12). Cependant, Γ_1 représente le taux d'émission d'un émetteur unique couplé à la nanoparticule (et non plus dans le vide). Il nous indique que la population $\rho_{ee}(t)$ va décroître exponentiellement avec un taux de $2\Gamma_1$ et se partager entre l'état symétrique et l'état anti-symétrique selon les ratios de partage respectifs $(\Gamma_1 + \Gamma_{12})/2\Gamma_1$ et $(\Gamma_1 - \Gamma_{12})/2\Gamma_1$. Ces mêmes états sont caractérisés par des taux de décroissance $\Gamma_S = \Gamma_1 + \Gamma_{12}$ et $\Gamma_A = \Gamma_1 - \Gamma_{12}$. Le taux d'émission collectif s'écrit :

$$W(t) = 2\Gamma_1 \rho_{ee}(t) + (\Gamma_1 + \Gamma_{12}) \rho_S(t) + (\Gamma_1 - \Gamma_{12}) \rho_A(t), \quad (3.81)$$

avec

$$\rho_{ee}(t) = \rho_{ee}(0) e^{-2\Gamma_1 t}, \quad (3.82)$$

$$\rho_S(t) = \rho_S(0) e^{-(\Gamma_1 + \Gamma_{12})t} + \rho_{ee}(0) \frac{\Gamma_1 + \Gamma_{12}}{\Gamma_1 - \Gamma_{12}} \left(e^{-(\Gamma_1 + \Gamma_{12})t} - e^{-2\Gamma_1 t} \right), \quad (3.83)$$

$$\rho_A(t) = \rho_A(0) e^{-(\Gamma_1 - \Gamma_{12})t} + \rho_{ee}(0) \frac{\Gamma_1 - \Gamma_{12}}{\Gamma_1 + \Gamma_{12}} \left(e^{-(\Gamma_1 - \Gamma_{12})t} - e^{-2\Gamma_1 t} \right). \quad (3.84)$$

Son évolution est représentée sur les figures 3.6 (a) et (b) pour des émetteurs placés sur les deux pôles de la

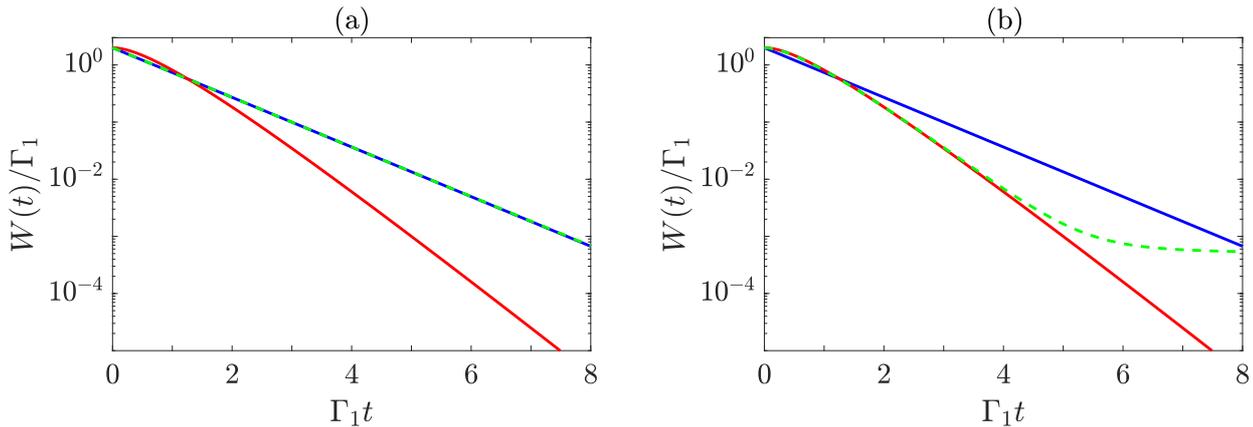


FIGURE 3.6 – Représentation du taux de relaxation collectif $W(t)$ (normalisé par Γ_1) pour deux émetteurs situés à 20 nm de la surface d'une sphère métallique de rayon 15 nm. La fréquence d'émission ω_0 est égale à 2.964 eV en (a) et correspond à la fréquence de résonance des modes d'ordre élevé. Sur la figure (b), la transition dipolaire des émetteurs est choisie pour être résonnante avec le mode dipolaire de la particule ($\omega_0 = 2.771$ eV). Les courbes rouges et bleues indiquent respectivement les taux caractéristiques de la superradiance idéale et de l'émission indépendante des deux dipôles. Les courbes en tirets verts correspondent aux taux global pour deux émetteurs situés de part et d'autre de la nano-particule ($\theta = \pi$). Le moment dipolaire est orienté radialement.

nanoparticule et dont la fréquence d'émission prend les valeurs $\omega_0 = 2.964$ eV et $\omega_0 = 2.771$ eV. Les courbes rouges correspondent au taux de relaxation collectif

$$W_{sup}(t) = 2\Gamma_1 e^{-2\Gamma_1 t} (1 + 2\Gamma_1 t) \quad (3.85)$$

obtenu dans le cas idéal de la superradiance. Les courbes bleues correspondent à l'émission indépendante de deux émetteurs dont le taux est donné par

$$W_{ind}(t) = 2\Gamma_1 e^{-\Gamma_1 t}. \quad (3.86)$$

Lorsque les modes d'ordre élevé sont mis à contribution par le choix de la fréquence de transition $\omega_0 = 2.964$ eV, le taux de décroissance collectif devient très faible ($\Gamma_{12} = -0.07\Gamma_1$) pour $\theta = \pi$ comme nous le montre la courbe orange de la figure 3.7 (b). Nous verrons par la suite que cette diminution du taux de décroissance collectif pour $\theta = \pi$ est causée par le changement de parité de la fonction de recouvrement selon l'ordre n des modes plasmoniques. La relaxation de chacun des deux émetteurs en configuration polaire peut donc être considérée comme un processus indépendant comme en témoigne l'allure de la courbe en tirets verts associée au taux $W(t)$ de la figure 3.6 (a). Pour une fréquence d'émission fixée à la résonance du mode dipolaire de la particule ($\omega_0 = 2.771$ eV), la décomposition modale de l'interaction peut se limiter au mode dipolaire uniquement du fait que les émetteurs sont suffisamment éloignés de la particule métallique. La valeur du taux de décroissance collectif peut être approximée par la formule suivante

$$\Gamma_{12} \approx \frac{4g_1^2}{\gamma_1} \mu_1^{(12)} \approx \Gamma_1 \mu_1^{(12)}, \quad (3.87)$$

avec $\mu_1^{(12)} = \cos(\theta)$. Les variations de ce taux en fonction de θ sont représentées par la courbe magenta de la figure 3.7 (b) et confirme l'approximation (3.87). Pour $\theta = \pi$, la valeur du module de Γ_{12} est très proche de Γ_1 ($\Gamma_{12} = -0.96\Gamma_1$) ce qui induit un processus de relaxation s'apparentant fortement au cas de la superradiance idéale comme illustré sur la figure 3.6 (b). La population va dans ce cas transiter par l'état anti-symétrique.

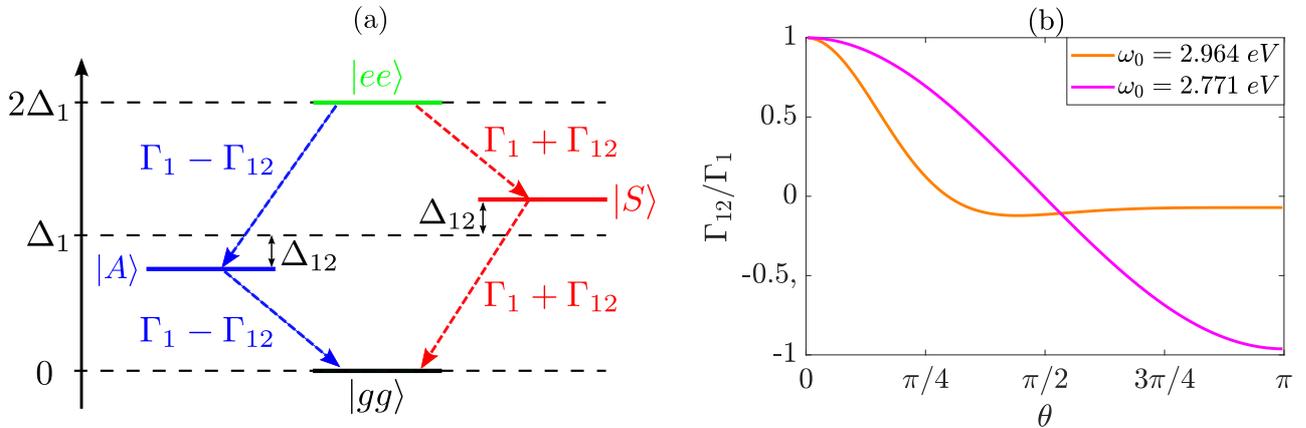


FIGURE 3.7 – (a) Schéma d'interaction dans la base $\{|ee\rangle, |S\rangle, |A\rangle, |gg\rangle\}$ pour deux émetteurs caractérisés par la même densité d'état locale. (b) Représentation graphique de la dépendance de Γ_{12} vis à vis de θ pour deux fréquences d'émission ω_0 .

3.2.3 Superradiance plasmonique idéale

Nous considérons la configuration où tous les émetteurs sont indiscernables en présence de la sphère métallique. Cela nous permettra de discuter des similitudes mais aussi des spécificités de la superradiance plasmonique par rapport à celle dans le vide. Dans cette configuration, le dissipateur de l'équation maîtresse respecte la symétrie d'invariance par permutation. Le taux de décroissance collectif doit respecter l'égalité suivante

$$|\Gamma_{jk}| = \Gamma \quad \forall j, k, \quad (3.88)$$

où nous considérons que la relaxation des émetteurs isolés en présence de la nano-particule est identique

$$\Gamma_{jj} = \Gamma, \quad (3.89)$$

et est caractérisée par le taux

$$\Gamma = \sum_{n=1}^{+\infty} \frac{\gamma_n g_n^2}{\delta_n^2 + \left(\frac{\gamma_n}{2}\right)^2}, \quad (3.90)$$

avec $g_n^{(j)} = g_n \forall j$. En comparaison du modèle de Dicke présenté dans la sous-section 3.1.3, nous prenons

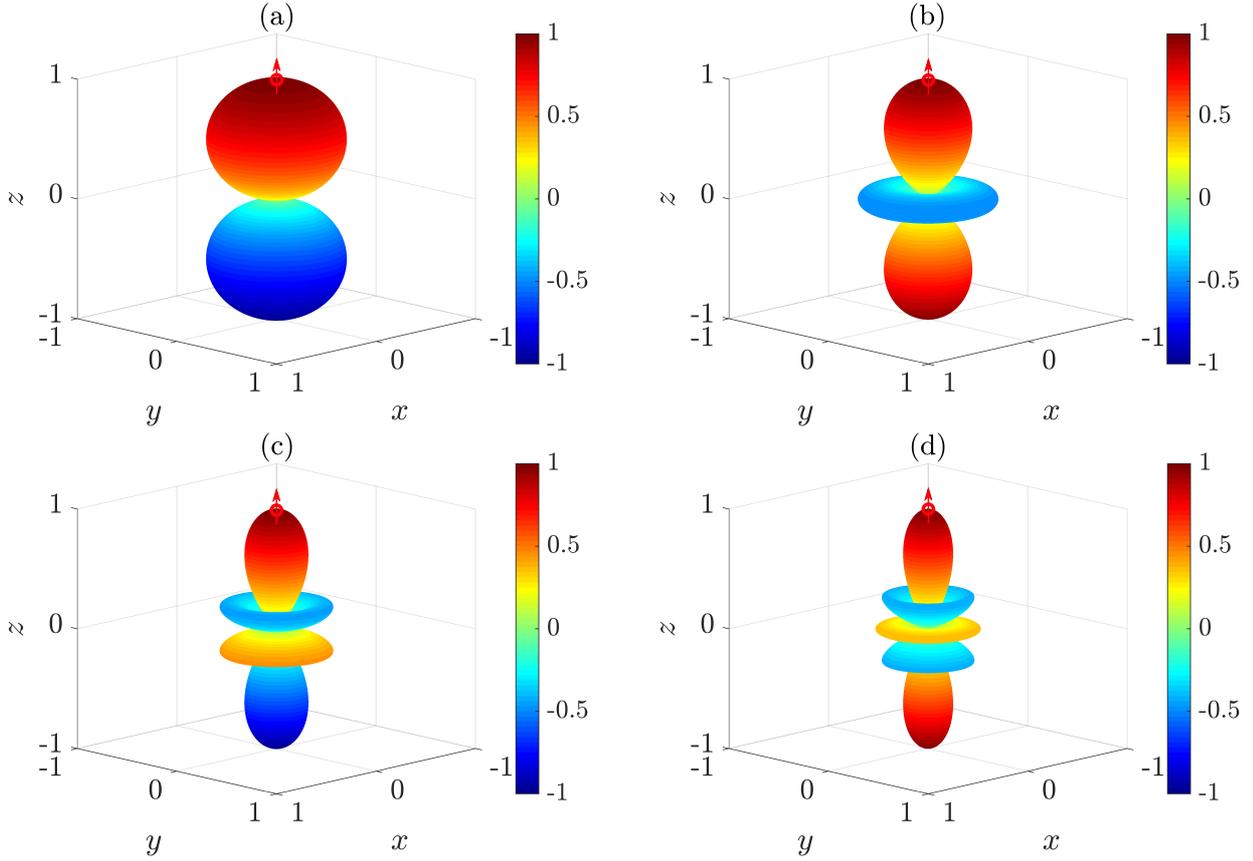


FIGURE 3.8 – Fonction de recouvrement $\mu_n^{(jk)}(\theta, \phi)$ pour les quatre premiers modes plasmoniques ((a) $n = 1$, (b) $n = 2$, (c) $n = 3$ et (d) $n = 4$) avec deux émetteurs situés à la même distance de la surface de la sphère. La position de l'émetteur source est fixée en $\theta_k = 0$ et $\phi_k = 0$ et est indiquée par le dipôle rouge. La position de l'émetteur récepteur j est définie par les angles $\theta_j = \theta$ et $\phi_j = \phi$ en coordonnées sphériques. Les moments dipolaires des deux émetteurs sont orientés selon le vecteur \mathbf{e}_r de la base sphérique $(\mathbf{e}_r, \mathbf{e}_\theta, \mathbf{e}_\phi)$.

en compte le cas de figure supplémentaire où $\Gamma_{jk} = -\Gamma$. D'après la formule (3.54) et en tenant compte de la condition (3.88), nous pouvons déduire que la fonction de recouvrement doit respecter les conditions suivantes :

$$\left| \mu_n^{(jk)} \right| = 1 \quad \forall j, k, n, \quad (3.91)$$

$$\frac{\mu_n^{(jk)}}{\left| \mu_n^{(jk)} \right|} = S^{(jk)} \quad \forall n. \quad (3.92)$$

Comme nous l'avons vu dans la sous-section (2.2.3) dédiée à l'orthonormalisation de Löwdin, la fonction $\mu_n^{(jk)}$ fait part du recouvrement entre les modes plasmoniques d'ordre n définis par les opérateurs $\hat{a}_n(\mathbf{r}_j, \omega_n)$ et $\hat{a}_n(\mathbf{r}_k, \omega_n)$. Lorsque $\left| \mu_n^{(jk)} \right| = 1$, la correspondance est maximale et les opérateurs bosoniques sont alors

linéairement dépendants : $\hat{a}_n(\mathbf{r}_j, \omega_n) = \mu_n^{(jk)} \hat{a}_n(\mathbf{r}_k, \omega_n)$. Ceci induit que les émetteurs j et k se couplent au même mode. Au contraire, si la fonction $\mu_n^{(jk)}$ est nulle alors les opérateurs $\hat{a}_n(\mathbf{r}_j, \omega_n)$ et $\hat{a}_n(\mathbf{r}_k, \omega_n)$ commutent, ce qui indique que les modes correspondant sont orthogonaux et donc qu'il n'existe aucune corrélation entre les émetteurs. L'égalité (3.92) impose que les deux émetteurs se couplent en phase (pour $S^{(jk)} = 1$) ou en opposition de phase (pour $S^{(jk)} = -1$) avec l'ensemble des modes plasmoniques quelque soit l'ordre n . L'équation maîtresse (3.47) rendue symétrique s'écrit alors ainsi

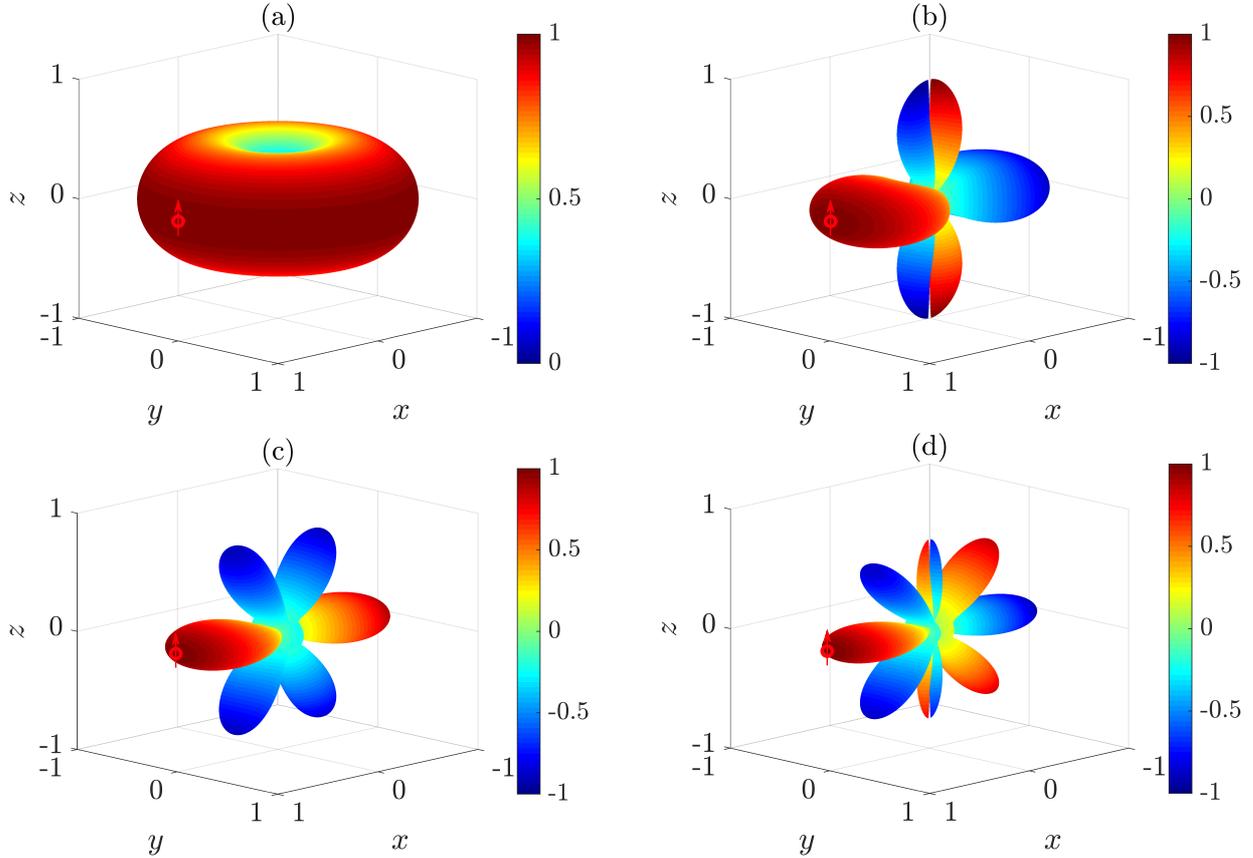


FIGURE 3.9 – Fonction de recouvrement $\mu_n^{(jk)}(\theta, \phi)$ pour les quatre premiers modes plasmoniques ((a) $n = 1$, (b) $n = 2$, (c) $n = 3$ et (d) $n = 4$) avec deux émetteurs situés à la même distance de la surface de la sphère. La position de l'émetteur source est fixée en $\theta_k = \pi/2$ et $\phi_k = 0$ et est indiquée par le dipôle rouge. La position de l'émetteur récepteur j est définie par les angles $\theta_j = \theta$ et $\phi_j = \phi$ dans le système de coordonnées sphériques. Les moments dipolaires des deux émetteurs sont orientés selon le vecteur \mathbf{e}_θ de la base sphérique ($\mathbf{e}_r, \mathbf{e}_\theta, \mathbf{e}_\phi$).

$$\mathcal{L}[\hat{\rho}(t)] = -i [\hat{H}', \hat{\rho}(t)] + \mathcal{D}[\hat{\rho}(t)], \quad (3.93)$$

$$\hat{H}' = - \sum_{n=1}^{+\infty} \frac{\delta_n g_n^2}{\delta_n^2 + (\frac{\gamma_n}{2})^2} \sum_{j=1}^{N_e} \sum_{k=1}^{N_e} S^{(jk)} \hat{\sigma}_+^{(k)} \sigma_-^{(j)}, \quad (3.94)$$

$$\mathcal{D}[\hat{\rho}(t)] = \sum_{n=1}^{+\infty} \frac{\gamma_n g_n^2}{\delta_n^2 + (\frac{\gamma_n}{2})^2} \sum_{j=1}^{N_e} \sum_{k=1}^{N_e} S^{(jk)} \left[\hat{\sigma}_-^{(j)} \hat{\rho}(t) \hat{\sigma}_+^{(k)} - \frac{1}{2} \left(\hat{\sigma}_+^{(k)} \hat{\sigma}_-^{(j)} \hat{\rho}(t) + \hat{\rho}(t) \hat{\sigma}_+^{(k)} \hat{\sigma}_-^{(j)} \right) \right]. \quad (3.95)$$

Les émetteurs sont dans ce cas indiscernables à un signe près donné par $S^{(jk)}$. Il vient donc que la cascade de Dicke ne se limite pas aux états symétriques définis par les relations (3.31) et (3.32) mais peut aussi inclure les états anti-symétriques comme nous avons pu le constater dans la sous-section 3.2.2. Nous introduisons le nouvel opérateur d'échelle de spin collectif

$$\hat{J}_\pm = \sum_{i=1}^{N_e} S^{(1i)} \hat{\sigma}_\pm^{(i)} \quad (3.96)$$

nous permettant d'écrire l'équation (3.93) sous forme factorisée :

$$\frac{d\hat{\rho}(t)}{dt} = i\Delta \left[\hat{J}_+ \hat{J}_-, \hat{\rho}(t) \right] + \Gamma \left[\hat{J}_- \hat{\rho}(t) \hat{J}_+ - \frac{1}{2} \left(\hat{J}_+ \hat{J}_- \hat{\rho}(t) + \hat{\rho}(t) \hat{J}_+ \hat{J}_- \right) \right], \quad (3.97)$$

en tenant compte de l'égalité suivante : $S^{(jk)} = S^{(ij)} S^{(ik)}$ et avec

$$\Delta = \sum_{n=1}^{+\infty} \frac{\delta_n g_n^2}{\delta_n^2 + \left(\frac{\gamma_n}{2}\right)^2}. \quad (3.98)$$

Les nouveaux états de Dicke $|J, M\rangle$ sont générés par application successive du nouvel opérateur de spin collectif \hat{J}_- sur l'état initial $|ee \dots ee\rangle$ tel que nous le montre la relation (3.32). Nous avons par exemple

$$|J, J-1\rangle = \frac{1}{\sqrt{N_e}} \left(|gee \dots ee\rangle + S^{(12)} |ege \dots ee\rangle + \dots + S^{(1N_e-1)} |eee \dots ge\rangle + S^{(1N_e)} |eee \dots eg\rangle \right).$$

La dynamique de relaxation en présence de la sphère est caractérisée par le temps $\tau = 2\pi/\Gamma$. Ce dernier est bien plus petit que le temps $\tau = 2\pi/\gamma_0$ de relaxation dans le vide. Ceci montre que la présence de la sphère induit une accélération globale du processus de dissipation par effet Purcell. Les figures 3.8 et 3.9 montrent la dépendance angulaire des fonctions de recouvrement modale pour les quatre premiers modes en considérant une orientation radiale et orthoradiale des dipôles. Dans le cas radial, la fonction $\mu_n^{(jk)}(\theta, \phi)$ est indépendante de l'angle ϕ et le recouvrement modal est maximal aux deux pôles de la nano-particule. On peut donc envisager une configuration pour laquelle les émetteurs seraient placés à chaque pôle de la particule pouvant être obtenue par photo polymérisation [89]. Cependant, pour $\theta = \pi$, le signe de la fonction $\mu_n^{(jk)}(\theta, \phi)$ change lorsque la parité de l'ordre du mode change. La condition sur le signe (3.92) ne sera alors pas respectée si plus d'un mode plasmon intervient dans le processus d'interaction et le phénomène de superradiance sera alors détérioré. Pour une orientation orthoradiale des dipôles, tous les émetteurs compris dans le plan défini par $z = 0$ se coupleront en phase avec le mode dipolaire de la particule. Pour les modes d'ordres supérieurs, nous voyons un recouvrement maximale sur les pôles de la nano-particule dont le signe change aussi selon la parité.

3.3 Exaltation de superradiance par couplage aux plasmons de surface localisés

Cette section est dédiée à l'application du modèle effectif présenté dans la section précédente. Nous commencerons par étudier le comportement d'émission collective pour différentes configurations spatiales d'un ensemble de six émetteurs. Nous verrons comment le phénomène de superradiance peut être dégradé lorsque les conditions (3.91) et (3.92) ne sont pas respectées.

3.3.1 Dynamique d'émission superradiante et rayonnement en champ lointain

Lorsque la configuration des émetteurs ne respecte pas entièrement la symétrie des modes plasmoniques, le processus collectif d'émission va être atténué. L'étude du taux d'énergie rayonnée va permettre de caractériser ce processus pour différentes configurations. En présence de la nano-particule, la désexcitation des émetteurs entraîne la libération d'énergie $I(t) = \hbar\omega_0 W(t)$ avec le taux donné par la moyenne quantique de l'opérateur $\hat{\Gamma}$:

$$W(t) = \langle \hat{\Gamma} \rangle = \left\langle \sum_{j,k=1}^{N_e} \Gamma_{jk} \hat{\sigma}_+^{(k)} \hat{\sigma}_-^{(j)} \right\rangle. \quad (3.99)$$

Cependant, toute cette énergie n'est pas rayonnée comme c'est le cas dans le vide. Une partie est absorbée par la sphère métallique et constitue les pertes ohmiques du système. Le taux de décroissance radiatif Γ_{jk}^{rad} peut être défini en identifiant la contribution radiative du tenseur de Green diffusé (2.192) dans le cadre de

l'approximation quasi-statique [86]. On a

$$\Gamma_{jk}^{rad} \simeq \gamma_{jk} - \frac{k_b^2 \omega_0^2}{2\pi \hbar \varepsilon_0 c^2} \sum_{p=e,o} \sum_{n=1}^{+\infty} \sum_{m=0}^n (2 - \delta_{0m}) \frac{2n+1}{n(n+1)} \frac{(n-m)!}{(n+m)!} \frac{1}{1 + C_n^2 |\alpha_n|^2} \quad (3.100)$$

$$\begin{aligned} & \times \left(C_n \Re[\alpha_n] \Im \left[\mathbf{d}^{(j)} \cdot \mathbf{N}_{nmp}^{(1)}(\mathbf{r}_j, k_b) \otimes \mathbf{N}_{nmp}^{(1)}(\mathbf{r}_k, k_b) \cdot \mathbf{d}^{(k)} \right] \right. \\ & \left. + C_n^2 |\alpha_n|^2 \Re \left[\mathbf{d}^{(j)} \cdot \mathbf{N}_{mn}^{(1)}(\mathbf{r}_j, k_b) \otimes \mathbf{N}_{mn}^{(1)}(\mathbf{r}_k, k_b) \cdot \mathbf{d}^{(k)} \right] \right), \end{aligned} \quad (3.101)$$

où l'expression de γ_{jk} est donnée par l'équation (3.3) et

$$C_n = \frac{(n+1)k_b^{2n+1}}{n(2n-1)!!(2n+1)!!}, \quad (3.102)$$

$$\alpha_n = \frac{n(\varepsilon_m - \varepsilon_b)}{n\varepsilon_m + (n+1)\varepsilon_b} R^{2n+1}. \quad (3.103)$$

ε_b et k_b sont respectivement la permittivité et le nombre d'onde du milieu diélectrique dans lequel sont plongés les émetteurs et la nano-particule. ε_m est la permittivité du métal constituant la sphère. L'expression des harmoniques sphériques vectorielles $\mathbf{N}_{nmp}^{(1)}(\mathbf{r}_k, k_b)$ est donnée par l'équation (2.26). On peut maintenant définir le taux d'énergie rayonnée $I_{rad}(t) = \hbar\omega_0 W_{rad}(t)$ avec

$$W_{rad}(t) = \langle \hat{\Gamma}_{rad} \rangle = \left\langle \sum_{j,k=1}^{N_e} \Gamma_{jk}^{rad} \hat{\sigma}_+^{(k)} \hat{\sigma}_-^{(j)} \right\rangle. \quad (3.104)$$

L'évolution des populations et des cohérences, nécessaire au calcul des taux $W(t)$ et $W_{rad}(t)$, sera calculée à partir de la simulation numérique de l'équation maîtresse (3.47) selon la méthode détaillée dans les références [90, 91]. L'opérateur matrice densité s'écrivant dans le sous-espace de Hilbert de dimension d comme suit

$$\hat{\rho}(t) = \sum_{n,m=1}^d \rho_{nm}(t) |n\rangle \langle m|, \quad (3.105)$$

peut être mis sous la forme d'un vecteur

$$|\tilde{\rho}(t)\rangle = \sum_{n,m=1}^d \rho_{nm}(t) |m\rangle \otimes |n\rangle, \quad (3.106)$$

où l'élément de matrice ρ_{nm} correspond à la composante $n + (m-1)d$ du vecteur $|\tilde{\rho}(t)\rangle$. De cette manière, l'équation maîtresse (3.47) devient un simple système linéaire

$$\frac{\partial}{\partial t} |\tilde{\rho}(t)\rangle = \mathbb{L} |\tilde{\rho}(t)\rangle, \quad (3.107)$$

avec

$$\begin{aligned} \mathbb{L} = & \sum_{j=1}^{N_e} \sum_{k=1}^{N_e} -i \left(\hat{H}'_{jk} \otimes \hat{\mathbb{1}} \right) + i \left(\hat{\mathbb{1}} \otimes \left(\hat{H}'_{jk} \right)^T \right) \\ & + \Gamma_{jk} \left[\hat{\sigma}_-^{(j)} \otimes \left(\hat{\sigma}_-^{(k)} \right)^* - \frac{1}{2} \left(\hat{\sigma}_+^{(k)} \hat{\sigma}_-^{(j)} \otimes \mathbb{1} + \mathbb{1} \otimes \left(\hat{\sigma}_-^{(j)} \right)^T \left(\hat{\sigma}_-^{(k)} \right)^* \right) \right]. \end{aligned} \quad (3.108)$$

Les symboles T et $*$ indiquent respectivement la transposée et le complexe conjugué de l'opérateur. L'évolution temporelle de la matrice densité est déterminée par

$$|\tilde{\rho}(t)\rangle = e^{\mathbb{L}t} |\tilde{\rho}(0)\rangle, \quad (3.109)$$

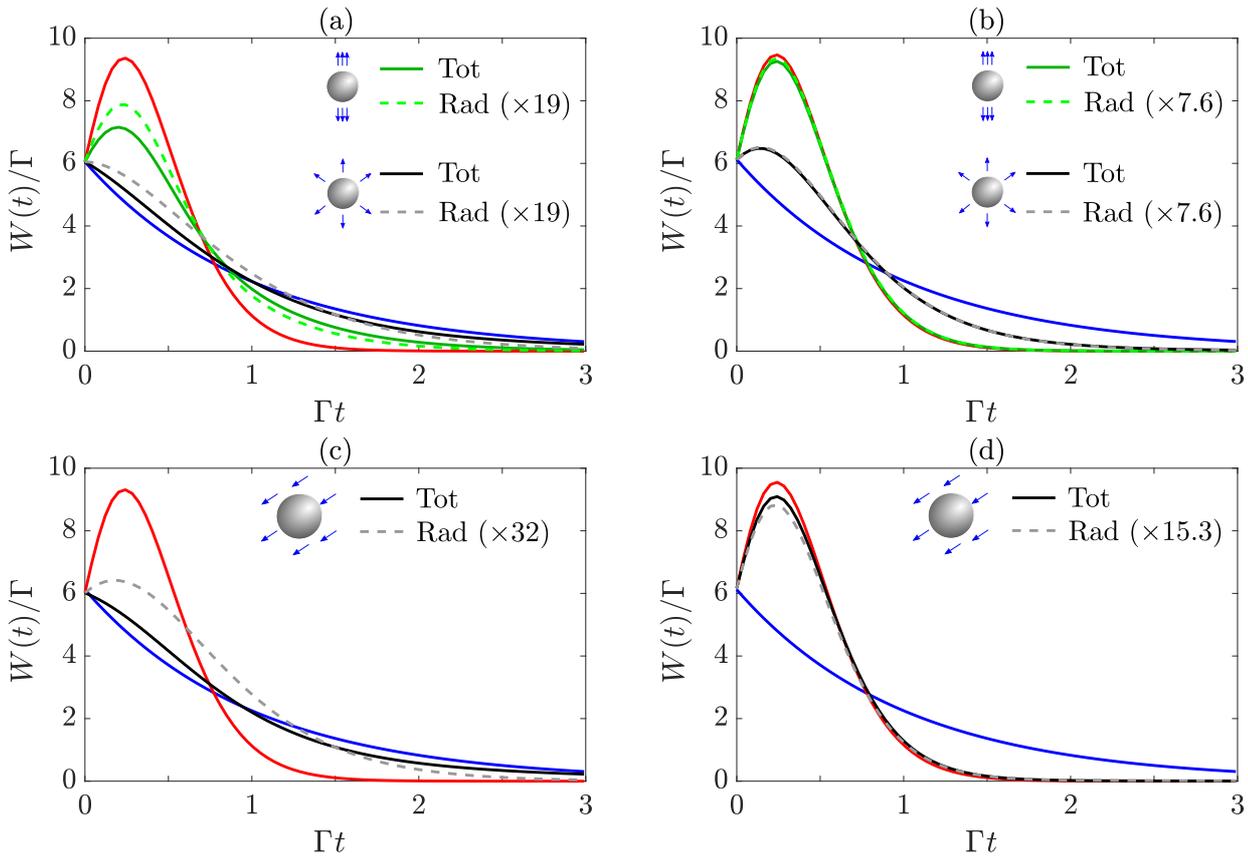


FIGURE 3.10 – Représentation des taux collectifs $W(t)$ et $W_{rad}(t)$, normalisés par le taux d'émission Γ , pour 6 émetteurs situés à $h = 2$ nm (a, c) et $h = 20$ nm (b, d) de la surface d'une sphère métallique de rayon 15 nm. Les courbes rouges indiquent les taux caractéristiques de la superradiance idéale qui seraient obtenue pour $|\Gamma_{jk}| = \Gamma \forall j, k$. Les courbes bleues correspondent à 6 émissions spontanées indépendantes ($\Gamma_{jk} = 0 \forall j \neq k$). Les courbes vertes et noires sont obtenues en considérant les configurations spatiales indiquées sur les graphiques. Le moment dipolaire des émetteurs est orienté radialement pour les figures (a) et (b) et orthoradialement pour les figures (c) et (d). La fréquence d'émission ω_0 est choisie de telle sorte qu'elle coïncide avec la fréquence de résonance du mode dipolaire de la nano-particule, c'est-à-dire $\omega_0 = 2.771$ eV.

en prenant comme condition initiale $\hat{\rho}(0) = |ee \cdots e\rangle\langle ee \cdots e|$. La figure 3.10 nous montre comment le phénomène de superradiance peut être affecté par la configuration spatiale des émetteurs. Afin de maximiser le taux d'énergie rayonnée par le système, nous fixons la fréquence d'émission ω_0 à la fréquence de résonance du mode le plus radiatif, le mode dipolaire. Cela a pour effet supplémentaire de favoriser la symétrie de ce mode. Lorsque les émetteurs sont suffisamment éloignés ($h = 20$ nm), la contribution du mode dipolaire dans le processus de relaxation est dominante comme nous le montre la décomposition modale 3.11 (b). La répartition des émetteurs sur les deux pôles de la nanoparticule est une configuration qui respecte la symétrie du mode dipolaire dans le cas d'une orientation radiale des moments dipolaires (voir figure 3.8 (a)). Ceci explique que l'évolution des taux collectifs (total et rayonné) indiqués en vert sur la figure 3.10 (b) soit très proche de celle du taux idéal pour cette configuration. Lorsque les émetteurs sont plus proches de la sphère ($h = 2$ nm), la contribution des modes d'ordres élevés devient importante (voir figure 3.11 (a)). La dépendance du signe de la fonction de recouvrement vis-à-vis de la parité des modes plasmoniques entraîne une diminution du pic d'émission des taux indiqués en vert sur la figure 3.10 (a). Pour une orientation orthoradiale des moments dipolaires, la répartition homogène des émetteurs illustrée sur les figures 3.10 (c) et (d) est en accord avec la symétrie du mode dipolaire uniquement (voir figure 3.9 (a)). Ceci explique l'allure des taux présentée sur ces mêmes figures. Les courbes de taux radiatif $W_{rad}(t)$ suivent la même tendance mais avec un pic d'émission plus prononcé du fait de la contribution majoritaire du mode dipolaire dans le processus de radiation. Nous remarquons que quelle que soit la distribution angulaire choisie, le rapprochement des émetteurs de la sphère provoque une

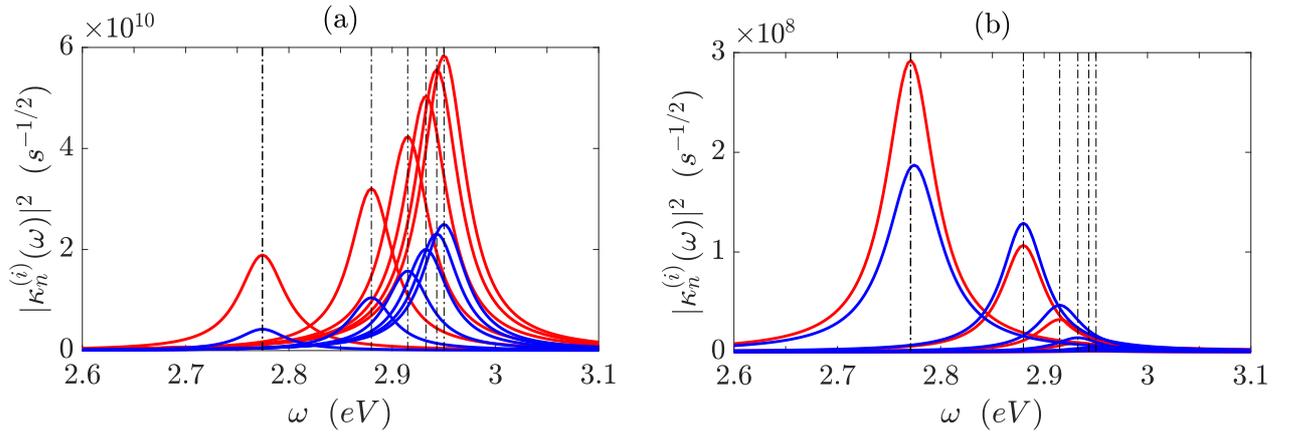


FIGURE 3.11 – Fonctions de couplage définies par la relation (2.52) pour un émetteur situé à 2 nm de la sphère en (a) et 20 nm de la sphère en (b). Les courbes bleues et rouges correspondent respectivement à une orientation orthoradiale et radiale du moment dipolaire. Sur la figure (b), les courbes bleues ont été multipliées par 4. Les lignes discontinues noires indiquent les fréquences de résonance des modes plasmoniques.

diminution du rendement quantique $\eta = W_{rad}(t)/W(t)$ de $1/7.6 = 13\%$ à $1/19 = 5\%$ pour une orientation radiale des moments dipolaires et de $1/15.3 = 7\%$ à $1/32 = 3\%$ pour une orientation orthoradiale. Nous avons choisi de normaliser l'ensemble des axes des graphiques de la figure 3.10 par rapport au taux Γ d'un émetteur isolé afin de mettre en avant l'allure des courbes. Cependant, la valeur de ce taux varie selon la distance h et l'orientation du moment dipolaire \mathbf{d} comme nous pouvons le voir sur le tableau 3.1. Plus les émetteurs sont proches de la particule et plus le processus d'émission est rapide et caractérisé par un pic d'émission important. Ce comportement est typique de l'exaltation de superradiance. On note aussi que la relaxation via les modes plasmoniques est plus efficace pour une orientation radiale des moments dipolaires.

Orientation	Radial		Orthoradial	
h (nm)	2	20	2	20
Γ/γ_0	1.1×10^4	93.3	3.7×10^3	15.4
Γ^{rad}/γ_0	600	12.2	115.4	1

TABLE 3.1 – Table des valeurs des taux Γ et Γ^{rad} , normalisés par γ_0 , pour les paramètres de distance et d'orientation utilisés pour le calcul des taux collectifs $W(t)$ et $W_{rad}(t)$ de la figure 3.10.

3.3.2 Base de Dicke étendue

Lorsque l'évolution du système dévie légèrement du cas de la superradiance idéale comme on peut l'observer sur la courbe noire de la figure 3.10 (d), il est intéressant de décrire la cascade dans la base de Dicke étendue qui est composée de l'ensemble des vecteurs propres de l'opérateur particulier $\hat{\Gamma}_{sup}$ dont l'expression est

$$\hat{\Gamma}_{sup} = \Gamma \hat{J}_+ \hat{J}_-. \quad (3.110)$$

L'espace de Hilbert, noté \mathcal{H} et de dimension $d = 2^{N_e}$, qui repose sur cette base étendue, est composé de $N_e + 1$ sous-espaces notés \mathcal{H}_M tel que

$$\mathcal{H} = \sum_{M=-J}^J \mathcal{H}_M. \quad (3.111)$$

Chacun d'entre eux est défini par une base constituée des états propres $|\alpha_M\rangle$ ayant le même nombre d'excitation donné par $J + M$ et tel que

$$\sum_i \hat{\sigma}_+^{(i)} \hat{\sigma}_-^{(i)} |\alpha_M\rangle = (J + M) |\alpha_M\rangle. \quad (3.112)$$

La dimension du sous-espace \mathcal{H}_M vaut

$$d_M = \frac{(2J)!}{[(J+M)!(J-M)!]}, \quad (3.113)$$

et on a $d = \sum_M d_M$. Parmi les d_M états de base de ce sous-espace, seul l'état de Dicke $|J, M\rangle$ possède une valeur propre non nulle. Il en découle que lorsque $\hat{\Gamma}$ tend vers $\hat{\Gamma}_{sup}$, la population va transiter d'un sous-espace \mathcal{H}_M à un sous-espace \mathcal{H}_{M-1} uniquement via les deux états de Dicke $|J, M\rangle$ et $|J, M-1\rangle$. C'est cette concentration de population sur un unique état brillant par sous-espace qui provoque le pic d'émission typique de la superradiance. L'espace de Hilbert utile subit une réduction de dimension de 2^{N_e} à $N_e + 1$. Cependant, si le processus d'émission s'écarte du cas idéal, la population va transiter vers d'autres états se traduisant par des fuites en dehors de la cascade de Dicke idéale comme illustré sur la figure 3.12. Le taux de transfert associé à

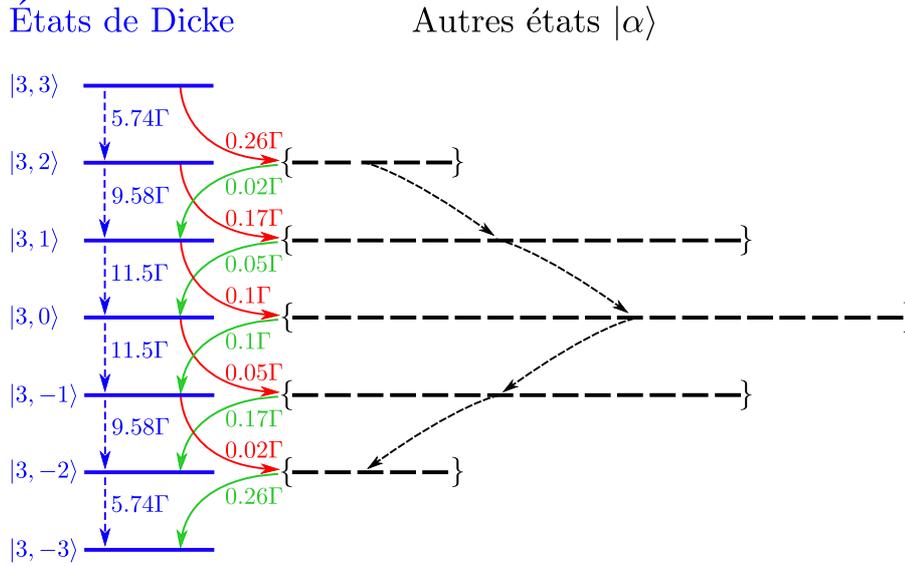


FIGURE 3.12 – Représentation de la cascade de Dicke donnant lieu au taux d'émission représenté par la courbe noire de la figure 3.10 (d).

la transition de l'état $|J, M\rangle$ à l'état $|J, M-1\rangle$ est représenté en bleu et est donné par

$$\Gamma_{M \rightarrow M-1} = \langle \widetilde{M-1} | \mathbb{D} | \widetilde{M} \rangle, \quad (3.114)$$

avec \mathbb{D} étant le dissipateur du Linbladien (3.108). Le terme $|\widetilde{M}\rangle$ est la représentation vectorielle du projecteur $|J, M\rangle\langle J, M|$ défini par

$$|\widetilde{M}\rangle = |J, M\rangle \otimes |J, M\rangle. \quad (3.115)$$

Les pertes de population de la cascade de Dicke, représentées en rouge, sont associées à l'ensemble des transitions de l'état $|J, M\rangle$ vers les états $|\alpha_{M-1}\rangle \neq |J, M-1\rangle$ et peuvent être calculées à partir de la relation suivante :

$$\Gamma_{M \rightarrow \alpha} = \Gamma_M - \Gamma_{M \rightarrow M-1}, \quad (3.116)$$

avec

$$\Gamma_M = \langle J, M | \hat{\Gamma} | J, M \rangle \quad (3.117)$$

les pertes totales de l'état $|J, M\rangle$. Les transitions vertes de la figure 3.12 correspondent aux taux de transfert de population en provenance des états $|\alpha_{M+1}\rangle \neq |J, M+1\rangle$ et à destination de l'état $|J, M\rangle$. Ils se calculent de la même manière :

$$\Gamma_{\alpha \rightarrow M} = \Upsilon_M - \Gamma_{M+1 \rightarrow M}, \quad (3.118)$$

avec

$$\Upsilon_M = \langle J, M | \sum_{j,k=1}^{N_e} \Gamma_{jk} \hat{\sigma}_-^{(j)} \hat{\sigma}_+^{(k)} | J, M \rangle \quad (3.119)$$

le gain de population de l'état $|J, M\rangle$. Dans le cas de la superradiance idéale, les taux $\Gamma_{M \rightarrow \alpha}$ et $\Gamma_{\alpha \rightarrow M}$ deviennent nuls et $\Gamma_{M \rightarrow M-1} = \Gamma_M = \Upsilon_{M-1} = \Gamma(J+M)(J-M+1) \forall M$. La cascade de Dicke représentée en bleu sur la figure 3.12 est alors isolée des états $|\alpha\rangle$ et les taux de décroissance correspondant prennent les valeurs : $6\Gamma \rightarrow 10\Gamma \rightarrow 12\Gamma \rightarrow 12\Gamma \rightarrow 10\Gamma \rightarrow 6\Gamma$. Dans le cas opposé où les émetteurs relaxent de manière indépendante, la population se répartit de manière homogène sur l'ensemble des états $|\alpha_M\rangle$ de chaque sous-espace \mathcal{H}_M . Le cas représenté sur la figure 3.12 correspond à la configuration orthoradiale de la figure 3.10 (a). La cascade superradiante est proche de la situation idéale, en accord avec le pic d'émission collective observé sur la 3.10 (a).

3.4 Conclusion

Dans ce chapitre nous avons discuté du processus collectif de relaxation d'un ensemble d'émetteurs couplés à une nano-particule métallique. Nous avons développé un formalisme dédié qui tient compte de l'ensemble des modes plasmons et des pertes radiatives ou non radiatives. L'étude du taux de relaxation collectif en fonction de la configuration spatiale, de l'orientation des moments dipolaires et de la fréquence d'émission des émetteurs nous a permis de caractériser ce processus collectif. Nous avons mis en évidence l'exaltation de superradiance par effet Purcell. Comme le temps d'établissement de l'émission coopérative ($1/N_e\Gamma$) doit être petit devant le taux de décohérence atomique Γ^* , l'effet Purcell devrait faciliter l'établissement du régime superradiant. Nous avons pu aussi constater que l'intervention des modes d'ordre élevé pouvait provoquer un blocage de superradiance. Ce domaine d'étude peut être intéressant à approfondir pour la conception de nano-sources optiques très lumineuses ou encore pour l'amplification de plasmons de surface par émission stimulée (SPASER) [92].

Annexe

3.A Calcul du taux de photons émis

Nous considérons de façon générale un ensemble de N_e fermions décrits par des systèmes à deux niveaux. Le fermion d'indice j est associé aux opérateurs de saut quantique $\hat{\sigma}_{\pm}^{(j)}$. Le système ainsi constitué est caractérisé par la matrice densité $\hat{\rho}(t)$ dont la dynamique est régie par l'équation maîtresse suivante :

$$\frac{\partial \hat{\rho}(t)}{\partial t} = -\frac{i}{\hbar} [\hat{H}, \hat{\rho}(t)] + \sum_{j,k=1}^{N_e} \gamma_{jk} \left(\hat{\sigma}_-^{(j)} \hat{\rho}(t) \hat{\sigma}_+^{(k)} - \frac{1}{2} \{ \hat{\sigma}_+^{(k)} \hat{\sigma}_-^{(j)}, \hat{\rho}(t) \} \right), \quad (3.120)$$

avec l'Hamiltonien

$$\hat{H} = \sum_{j,k=1}^{N_e} \Omega_{jk} \hat{\sigma}_+^{(k)} \hat{\sigma}_-^{(j)}. \quad (3.121)$$

Nous souhaitons exprimer le taux de photons émis $W(t)$ en fonction des opérateurs du système en partant de la définition suivante :

$$W(t) = -\frac{\partial}{\partial t} \left\langle \sum_{l=1}^{N_e} \hat{\sigma}_+^{(l)} \hat{\sigma}_-^{(l)} \right\rangle. \quad (3.122)$$

Nous commençons d'abord par exprimer la moyenne quantique de l'opérateur $\sum_{l=1}^{N_e} \hat{\sigma}_+^{(l)} \hat{\sigma}_-^{(l)}$ comme étant la trace de la matrice densité multiplié par l'opérateur en question puis nous appliquons la dérivée temporelle sur l'ensemble pour obtenir

$$W(t) = -\text{Tr} \left\{ \frac{\partial \hat{\rho}(t)}{\partial t} \sum_{l=1}^{N_e} \hat{\sigma}_+^{(l)} \hat{\sigma}_-^{(l)} \right\}. \quad (3.123)$$

En injectant l'équation maîtresse (3.120) dans (3.123) et en développant la formule nous trouvons

$$W(t) = W_{\hat{H}}(t) + W_{\mathcal{D}}(t) \quad (3.124)$$

avec

$$W_{\hat{H}}(t) = -\text{Tr} \left\{ i \sum_{j,k,l} \Omega_{jk} [\hat{\rho}(t), \hat{\sigma}_+^{(k)} \hat{\sigma}_-^{(j)}] \hat{\sigma}_+^{(l)} \hat{\sigma}_-^{(l)} \right\}, \quad (3.125)$$

et

$$W_{\mathcal{D}}(t) = -\text{Tr} \left\{ \sum_{j,k,l} \gamma_{jk} \left(\hat{\sigma}_-^{(j)} \hat{\rho}(t) \hat{\sigma}_+^{(k)} \hat{\sigma}_+^{(l)} \hat{\sigma}_-^{(l)} - \frac{1}{2} \{ \hat{\sigma}_+^{(k)} \hat{\sigma}_-^{(j)}, \hat{\rho}(t) \} \hat{\sigma}_+^{(l)} \hat{\sigma}_-^{(l)} \right) \right\}. \quad (3.126)$$

Le terme $W_{\hat{H}}(t)$ est associé à la partie cohérente de l'équation maîtresse faisant intervenir le commutateur de $\hat{\rho}$ et \hat{H} . La partie incohérente liée au dissipateur de l'équation maîtresse est incluse dans le terme $W_{\mathcal{D}}(t)$. En utilisant la propriété d'invariance de la trace par permutation circulaire, nous pouvons écrire

$$W_{\hat{H}}(t) = -\text{Tr} \left\{ i \hat{\rho}(t) \sum_{j,k,l} \Omega_{jk} \left(\hat{\sigma}_+^{(k)} \hat{\sigma}_-^{(j)} \hat{\sigma}_+^{(l)} \hat{\sigma}_-^{(l)} - \hat{\sigma}_+^{(l)} \hat{\sigma}_-^{(l)} \hat{\sigma}_+^{(k)} \hat{\sigma}_-^{(j)} \right) \right\}, \quad (3.127)$$

et

$$W_{\mathcal{D}}(t) = -\text{Tr} \left\{ \hat{\rho}(t) \sum_{j,k,l} \gamma_{jk} \left[\hat{\sigma}_+^{(k)} \hat{\sigma}_+^{(l)} \hat{\sigma}_-^{(j)} - \frac{1}{2} \left(\hat{\sigma}_+^{(k)} \hat{\sigma}_-^{(j)} \hat{\sigma}_+^{(l)} \hat{\sigma}_-^{(l)} + \hat{\sigma}_+^{(l)} \hat{\sigma}_-^{(l)} \hat{\sigma}_+^{(k)} \hat{\sigma}_-^{(j)} \right) \right] \right\}. \quad (3.128)$$

Dans un soucis de lisibilité, nous traiterons ces deux parties de manière séparée. Dans les deux cas, nous aurons recours aux relations d'anti-commutation suivantes

$$\left\{ \hat{\sigma}_+^{(l)}, \hat{\sigma}_-^{(j)} \right\} = \delta_{lj} \hat{\mathbb{1}} + 2(1 - \delta_{lj}) \hat{\sigma}_+^{(l)} \hat{\sigma}_-^{(j)} \quad (3.129)$$

$$\left\{ \hat{\sigma}_\pm^{(j)}, \hat{\sigma}_\pm^{(l)} \right\} = 2(1 - \delta_{lj}) \hat{\sigma}_\pm^{(l)} \hat{\sigma}_\pm^{(j)}. \quad (3.130)$$

Partie cohérente : Nous nous concentrons ici sur le calcul de l'opérateur \hat{A} intervenant dans (3.127) et défini par

$$\hat{A} = \sum_{j,k,l} \Omega_{jk} \left(\hat{\sigma}_+^{(k)} \hat{\sigma}_-^{(j)} \hat{\sigma}_+^{(l)} \hat{\sigma}_-^{(l)} - \hat{\sigma}_+^{(l)} \hat{\sigma}_-^{(l)} \hat{\sigma}_+^{(k)} \hat{\sigma}_-^{(j)} \right), \quad (3.131)$$

$$= \sum_{j,k,l} \Omega_{jk} \left[\hat{\sigma}_+^{(k)} \hat{\sigma}_-^{(j)}, \hat{\sigma}_+^{(l)} \hat{\sigma}_-^{(l)} \right]. \quad (3.132)$$

À partir de la première relation d'anti-commutation (3.129), nous pouvons déduire que

$$\hat{\sigma}_-^{(j)} \hat{\sigma}_+^{(l)} = \delta_{lj} \hat{\mathbb{1}} + (1 - 2\delta_{lj}) \hat{\sigma}_+^{(l)} \hat{\sigma}_-^{(j)}, \quad (3.133)$$

et développer l'expression des opérateurs $\hat{\sigma}_-^{(j)} \hat{\sigma}_+^{(l)}$ et $\hat{\sigma}_-^{(l)} \hat{\sigma}_+^{(k)}$ présents dans l'expression (3.131) à l'aide de cette nouvelle relation. On trouve que

$$\begin{aligned} \hat{A} &= \sum_{j,k} \Omega_{jk} \hat{\sigma}_+^{(k)} \hat{\sigma}_-^{(j)} + \sum_{j,k,l} \Omega_{jk} \hat{\sigma}_+^{(k)} \hat{\sigma}_+^{(l)} \hat{\sigma}_-^{(j)} \hat{\sigma}_-^{(l)} - \sum_{j,k} 2\Omega_{jk} \hat{\sigma}_+^{(k)} \hat{\sigma}_+^{(j)} \hat{\sigma}_-^{(j)} \hat{\sigma}_-^{(k)} \\ &\quad - \sum_{j,k} \Omega_{jk} \hat{\sigma}_+^{(k)} \hat{\sigma}_-^{(j)} - \sum_{j,k,l} \Omega_{jk} \hat{\sigma}_+^{(l)} \hat{\sigma}_+^{(k)} \hat{\sigma}_-^{(l)} \hat{\sigma}_-^{(j)} + \sum_{j,k} 2\Omega_{jk} \hat{\sigma}_+^{(k)} \hat{\sigma}_+^{(k)} \hat{\sigma}_-^{(k)} \hat{\sigma}_-^{(j)}. \end{aligned} \quad (3.134)$$

La seconde relation d'anti-commutation (3.130) nous permet d'écrire

$$\hat{\sigma}_\pm^{(j)} \hat{\sigma}_\pm^{(l)} = (1 - \delta_{lj}) \hat{\sigma}_\pm^{(l)} \hat{\sigma}_\pm^{(j)}, \quad (3.135)$$

ce qui entraîne que $\hat{\sigma}_\pm^{(j)} \hat{\sigma}_\pm^{(j)} = \hat{0} \forall j$. Le troisième et dernier terme de la somme (3.134) s'annulent donc. Après soustraction du premier et quatrième terme, l'opérateur \hat{A} s'écrit

$$\hat{A} = \sum_{j,k,l} \Omega_{jk} \left(\hat{\sigma}_+^{(k)} \hat{\sigma}_+^{(l)} \hat{\sigma}_-^{(j)} \hat{\sigma}_-^{(l)} - \hat{\sigma}_+^{(l)} \hat{\sigma}_+^{(k)} \hat{\sigma}_-^{(l)} \hat{\sigma}_-^{(j)} \right). \quad (3.136)$$

En utilisant la relation (3.135), nous pouvons développer les opérateurs $\hat{\sigma}_-^{(j)} \hat{\sigma}_-^{(l)}$ et $\hat{\sigma}_+^{(l)} \hat{\sigma}_+^{(k)}$ présents dans l'expression (3.136). On trouve

$$\begin{aligned} \hat{A} &= \sum_{j,k,l} \Omega_{jk} \hat{\sigma}_+^{(k)} \hat{\sigma}_+^{(l)} \hat{\sigma}_-^{(j)} \hat{\sigma}_-^{(l)} - \sum_{j,k} \Omega_{jk} \hat{\sigma}_+^{(k)} \hat{\sigma}_+^{(j)} \hat{\sigma}_-^{(j)} \hat{\sigma}_-^{(k)} \\ &\quad - \sum_{j,k,l} \Omega_{jk} \hat{\sigma}_+^{(k)} \hat{\sigma}_+^{(l)} \hat{\sigma}_-^{(l)} \hat{\sigma}_-^{(j)} + \sum_{j,k} \Omega_{jk} \hat{\sigma}_+^{(k)} \hat{\sigma}_+^{(k)} \hat{\sigma}_-^{(k)} \hat{\sigma}_-^{(j)}. \end{aligned} \quad (3.137)$$

D'après (3.135), le deuxième et dernier terme de cette somme sont nuls et le premier et troisième terme se soustraient. L'opérateur \hat{A} étant nul, le taux $W_{\hat{H}}(t)$ l'est aussi. Nous en déduisons que le transfert cohérent de population entre fermions n'entraîne aucune émission de photon.

Partie incohérente : Nous commençons par définir l'opérateur \hat{B} intervenant dans l'expression de $W_{\mathcal{D}}(t)$ (3.128) tel que

$$\hat{B} = \sum_{j,k,l} \frac{\gamma_{jk}}{2} \left(\hat{\sigma}_+^{(k)} \hat{\sigma}_-^{(j)} \hat{\sigma}_+^{(l)} \hat{\sigma}_-^{(l)} + \hat{\sigma}_+^{(l)} \hat{\sigma}_-^{(l)} \hat{\sigma}_+^{(k)} \hat{\sigma}_-^{(j)} \right), \quad (3.138)$$

$$= \sum_{j,k,l} \frac{\gamma_{jk}}{2} \left\{ \hat{\sigma}_+^{(k)} \hat{\sigma}_-^{(j)}, \hat{\sigma}_+^{(l)} \hat{\sigma}_-^{(l)} \right\}. \quad (3.139)$$

Nous remarquons que la définition (3.139) de l'opérateur \hat{B} est très similaire à celle de l'opérateur \hat{A} (voir eq. (3.132)). La méthode de calcul utilisée est donc identique. En utilisant la relation (3.133), nous pouvons développer l'expression de \hat{B} pour trouver

$$\hat{B} = \sum_{j,k} \gamma_{jk} \hat{\sigma}_+^{(k)} \hat{\sigma}_-^{(j)} + \sum_{j,k,l} \frac{\gamma_{jk}}{2} \left(\hat{\sigma}_+^{(k)} \hat{\sigma}_+^{(l)} \hat{\sigma}_-^{(j)} \hat{\sigma}_-^{(l)} + \hat{\sigma}_+^{(l)} \hat{\sigma}_+^{(k)} \hat{\sigma}_-^{(l)} \hat{\sigma}_-^{(j)} \right). \quad (3.140)$$

Ensuite, nous utilisons l'expression (3.135) pour transformer les deux derniers termes de la somme ci-dessus. Il découle que

$$\hat{B} = \sum_{j,k} \gamma_{jk} \hat{\sigma}_+^{(k)} \hat{\sigma}_-^{(j)} + \sum_{j,k,l} \gamma_{jk} \hat{\sigma}_+^{(k)} \hat{\sigma}_+^{(l)} \hat{\sigma}_-^{(l)} \hat{\sigma}_-^{(j)}. \quad (3.141)$$

Enfin, nous pouvons utiliser ce dernier résultat pour déterminer l'expression de $W_{\mathcal{D}}(t)$:

$$\begin{aligned} W_{\mathcal{D}}(t) &= -\text{Tr} \left\{ \hat{\rho}(t) \left(\sum_{j,k,l} \gamma_{jk} \hat{\sigma}_+^{(k)} \hat{\sigma}_+^{(l)} \hat{\sigma}_-^{(l)} \hat{\sigma}_-^{(j)} - \hat{B} \right) \right\} \\ &= \text{Tr} \left\{ \hat{\rho}(t) \sum_{j,k} \gamma_{jk} \hat{\sigma}_+^{(k)} \hat{\sigma}_-^{(j)} \right\}, \end{aligned} \quad (3.142)$$

et en déduire une formulation simple du taux $W(t)$:

$$W(t) = \left\langle \sum_{j,k} \gamma_{jk} \hat{\sigma}_+^{(k)} \hat{\sigma}_-^{(j)} \right\rangle. \quad (3.143)$$

Annexe

3.B Construction de l'équation maîtresse en régime de couplage faible

En considérant l'Hamiltonien (3.42), nous pouvons d'abord déduire l'équation de Langevin pour tout opérateur du système donné par l'expression (2.214) de l'annexe 2.B. Pour rappel, celle-ci s'écrit

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} \left(\hat{X}_S(t) \right) = & -\frac{i}{\hbar} \left[\hat{X}_S(t), \hat{H}_S(t) \right] + \sum_{n=1}^{+\infty} \sum_{j=1}^{N_{ind}} \mathcal{I}_{\emptyset, n}^{(j)} \left(\hat{X}_S(t) \right) \\ & + \sum_{n=1}^{+\infty} \sum_{j=1}^{N_{ind}} \gamma_n \left(\hat{b}_n^{(j)\dagger}(t) \hat{X}_S(t) \hat{b}_n^{(j)}(t) - \frac{1}{2} \left\{ \hat{b}_n^{(j)\dagger}(t) \hat{b}_n^{(j)}(t), \hat{X}_S(t) \right\} \right), \end{aligned} \quad (3.144)$$

avec

$$\hat{H}_S(t) = \sum_{n=1}^{+\infty} \hbar \delta_n \sum_{j=1}^{N_{ind}} \hat{b}_n^{(j)\dagger}(t) \hat{b}_n^{(j)}(t) + \hbar \sum_{l=1}^{N_e} \sum_{n=1}^{+\infty} \sum_{j=1}^{N_{ind}} \left(g_n^{(lj)} \hat{\sigma}_+^{(l)}(t) \hat{b}_n^{(j)}(t) + \left(g_n^{(lj)} \right)^* \hat{b}_n^{(j)\dagger}(t) \hat{\sigma}_-^{(l)}(t) \right) \quad (3.145)$$

$$\mathcal{I}_{\emptyset, n}^{(j)} \left(\hat{X}_S(t) \right) = \sqrt{\gamma_n} \left(\hat{c}_{\emptyset, n}^{(j)\dagger}(t) \left[\hat{X}_S(t), \hat{b}_n^{(j)}(t) \right] - \left[\hat{X}_S(t), \hat{b}_n^{(j)\dagger}(t) \right] \hat{c}_{\emptyset, n}^{(j)}(t) \right). \quad (3.146)$$

Nous commençons par procéder à l'élimination adiabatique des opérateurs $\hat{b}_n^{(j)}(t)$ et $\hat{b}_n^{(j)\dagger}(t)$ et des sous-espaces qu'ils génèrent pour ensuite éliminer l'environnement et aboutir à l'équation maîtresse dictant la dynamique du système.

3.B.1 Élimination adiabatique

Lorsque les pertes des pseudo-modes de cavité sont très importantes par rapport au couplage aux émetteurs, il est possible de les éliminer du système. Ces derniers agissent sur les émetteurs comme un canal de dissipation supplémentaire. En les éliminant, nous pouvons reporter les pertes engendrées par le couplage émetteur/cavité directement sur les émetteurs. Pour ce faire nous faisons l'approximation

$$\frac{\partial}{\partial t} \langle \hat{b}_n^{(i)}(t) \rangle \approx 0 \quad \forall i, n. \quad (3.147)$$

La probabilité que l'excitation sur le pseudo-mode se dissipe étant très importante, le pseudo-mode est très peu peuplé et il sert uniquement de lien entre les émetteurs et l'environnement. Les fluctuations de cette moyenne sont donc nulles. L'expression de la moyenne peut s'écrire

$$\langle \hat{b}_n^{(i)}(t) \rangle = \langle \psi(t_0) | \hat{b}_n^{(i)}(t) | \psi(t_0) \rangle, \quad (3.148)$$

où $|\psi(t_0)\rangle$ est la fonction d'onde du système normalisée prise à l'instant initial t_0 . On en déduit que la dérivée temporelle de celle-ci peut se reporter directement sur l'opérateur $\hat{b}_n^{(i)}(t)$ et écrire

$$\frac{\partial \hat{b}_n^{(i)}(t)}{\partial t} \approx 0, \quad (3.149)$$

puisque c'est le seul élément dépendant du temps. On reprend l'expression (3.144) dans laquelle on remplace $\hat{X}_S(t)$ par $\hat{b}_n^{(i)}(t)$ et on obtient

$$\frac{\partial}{\partial t} \left(\hat{b}_n^{(i)}(t) \right) = -i \delta_n \hat{b}_n^{(i)}(t) + \sum_{j=1}^{N_e} \left(g_n^{(ji)} \right)^* \hat{\sigma}_-^{(j)}(t) - \sqrt{\gamma_n} \hat{c}_{\emptyset, n}^{(i)}(t) - \frac{\gamma_n}{2} \hat{b}_n^{(i)}(t). \quad (3.150)$$

L'élimination adiabatique nous permet d'établir les relations entre les opérateurs $\hat{b}_n^{(i)}(t)$ ($\hat{b}_n^{(i)\dagger}(t)$) et les opérateurs $\hat{\sigma}_-^{(j)}(t)$ ($\hat{\sigma}_+^{(j)}(t)$) et $\hat{c}_{\emptyset,n}^{(i)}(t)$ ($\hat{c}_{\emptyset,n}^{(i)\dagger}(t)$) ainsi :

$$\hat{b}_n^{(i)}(t) = i \frac{\sqrt{\gamma_n} \hat{c}_{\emptyset,n}^{(i)}(t) - \sum_{j=1}^{N_e} (g_n^{(ji)})^* \sigma_-^{(j)}(t)}{\delta_n - i \frac{\gamma_n}{2}} \quad (3.151)$$

$$\hat{b}_n^{(i)\dagger}(t) = -i \frac{\sqrt{\gamma_n} \hat{c}_{\emptyset,n}^{(i)\dagger}(t) - \sum_{j=1}^{N_e} g_n^{(ji)} \sigma_+^{(j)}(t)}{\delta_n + i \frac{\gamma_n}{2}}. \quad (3.152)$$

Nous pouvons maintenant injecter ces relations dans l'expression (3.144) afin d'aboutir à l'expression suivante

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} (\hat{X}_S(t)) &= -\frac{i}{\hbar} [\hat{X}_S(t), \hat{H}_S(t)] + \sum_{n=1}^{+\infty} \sum_{i=1}^{N_{ind}} \hat{\mathcal{D}}_{\emptyset,n}^{(i)} (\hat{X}_S(t)) \\ &+ \sum_{j=1}^{N_e} \sum_{k=1}^{N_e} \Gamma_{jk} \left[\hat{\sigma}_+^{(k)}(t) \hat{X}_S(t) \hat{\sigma}_-^{(j)}(t) - \frac{1}{2} \left\{ \hat{\sigma}_+^{(k)}(t) \hat{\sigma}_-^{(j)}(t), \hat{X}_S(t) \right\} \right], \end{aligned} \quad (3.153)$$

où $\mathcal{D}_{\emptyset,n}^{(i)} (\hat{X}_S(t))$ regroupe l'ensemble des opérateurs faisant intervenir les opérateurs de bain intégrés isolés $\hat{c}_{\emptyset,n}^{(i)}(t)$ et $\hat{c}_{\emptyset,n}^{(i)\dagger}(t)$:

$$\begin{aligned} \hat{\mathcal{D}}_{\emptyset,n}^{(i)} (\hat{X}_S(t)) &= \sqrt{\gamma_n} \left(i \frac{\hat{c}_{\emptyset,n}^{(i)\dagger}(t)}{\delta_n - i \frac{\gamma_n}{2}} \left[\hat{X}_S(t), \sqrt{\gamma_n} \hat{c}_{\emptyset,n}^{(i)}(t) - \sum_{j=1}^{N_e} (g_n^{(ji)})^* \hat{\sigma}_-^{(j)}(t) \right] \right. \\ &+ i \left[\hat{X}_S(t), \sqrt{\gamma_n} \hat{c}_{\emptyset,n}^{(i)\dagger}(t) - \sum_{k=1}^{N_e} g_n^{(ki)} \hat{\sigma}_+^{(k)}(t) \right] \frac{\hat{c}_{\emptyset,n}^{(i)}(t)}{\delta_n + i \frac{\gamma_n}{2}} \Big) \\ &+ \frac{\gamma_n}{\delta_n^2 + \left(\frac{\gamma_n}{2}\right)^2} \left(\gamma_n \hat{c}_{\emptyset,n}^{(i)\dagger}(t) \hat{X}_S(t) \hat{c}_{\emptyset,n}^{(i)}(t) - \sqrt{\gamma_n} \hat{c}_{\emptyset,n}^{(i)\dagger}(t) \hat{X}_S(t) \sum_{j=1}^{N_e} (g_n^{(ji)})^* \hat{\sigma}_-^{(j)}(t) \right. \\ &- \sqrt{\gamma_n} \sum_{k=1}^{N_e} g_n^{(ki)} \hat{\sigma}_+^{(k)}(t) \hat{X}_S(t) \hat{c}_{\emptyset,n}^{(i)}(t) - \frac{1}{2} \left\{ \gamma_n \hat{c}_{\emptyset,n}^{(i)\dagger}(t) \hat{c}_{\emptyset,n}^{(i)}(t) - \right. \\ &\left. \left. \sqrt{\gamma_n} \hat{c}_{\emptyset,n}^{(i)\dagger}(t) \sum_{j=1}^{N_e} (g_n^{(ji)})^* \hat{\sigma}_-^{(j)}(t) - \sqrt{\gamma_n} \sum_{k=1}^{N_e} g_n^{(ki)} \hat{\sigma}_+^{(k)}(t) \hat{c}_{\emptyset,n}^{(i)}(t), \hat{X}_S(t) \right\} \right). \end{aligned} \quad (3.154)$$

Les taux de décroissance collectifs Γ_{jk} intervenant dans (3.153) sont définis par

$$\Gamma_{jk} = \sum_{n=1}^{+\infty} \frac{\gamma_n}{\delta_n^2 + \left(\frac{\gamma_n}{2}\right)^2} \sum_{i=1}^{N_{ind}} (g_n^{(ji)})^* g_n^{(ki)}. \quad (3.155)$$

Si l'on injecte les relations (3.151) et (3.152) dans l'expression (3.145), nous pouvons développer l'expression de la dérivée temporelle de $\hat{X}_S(t)$ ainsi :

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} (\hat{X}_S(t)) &= i \sum_{j=1}^{N_e} \sum_{k=1}^{N_e} \Delta_{jk} \left[\hat{X}_S(t), \hat{\sigma}_+^{(k)}(t) \hat{\sigma}_-^{(j)}(t) \right] - \frac{i}{\hbar} \sum_{n=1}^{+\infty} \sum_{i=1}^{N_{ind}} \left[\hat{X}_S(t), \hat{H}_{\emptyset,n}^{(i)}(t) \right] \\ &+ \sum_{n=1}^{+\infty} \sum_{i=1}^{N_{ind}} \hat{\mathcal{D}}_{\emptyset,n}^{(i)} (\hat{X}_S(t)) + \sum_{j=1}^{N_e} \sum_{k=1}^{N_e} \Gamma_{jk} \left[\hat{\sigma}_+^{(k)}(t) \hat{X}_S(t) \hat{\sigma}_-^{(j)}(t) - \frac{1}{2} \left\{ \hat{\sigma}_+^{(k)}(t) \hat{\sigma}_-^{(j)}(t), \hat{X}_S(t) \right\} \right], \end{aligned} \quad (3.156)$$

où $\hat{H}_{\emptyset,n}^{(i)}(t)$ regroupe l'ensemble des opérateurs faisant intervenir les opérateurs de bain intégrés isolés $\hat{c}_{\emptyset,n}^{(i)}(t)$ et $\hat{c}_{\emptyset,n}^{(i)\dagger}(t)$:

$$\hat{H}_{\emptyset,n}^{(i)}(t) = \frac{i\hbar(\gamma_n)^{3/2}}{2\left(\delta_n^2 + \left(\frac{\gamma_n}{2}\right)^2\right)} \left(\sum_{j=1}^{N_e} g_n^{(ji)} \hat{\sigma}_+^{(j)}(t) \hat{c}_{\emptyset,n}^{(i)}(t) - (g_n^{(ji)})^* \hat{c}_{\emptyset,n}^{(i)\dagger}(t) \hat{\sigma}_-^{(j)}(t) \right) + \frac{\hbar\delta_n\gamma_n}{\delta_n^2 + \left(\frac{\gamma_n}{2}\right)^2} \hat{c}_{\emptyset,n}^{(i)\dagger}(t) \hat{c}_{\emptyset,n}^{(i)}(t). \quad (3.157)$$

Le terme Δ_{jk} intervenant dans (3.156) est donné par

$$\Delta_{jk} = \sum_{n=1}^{+\infty} \frac{\delta_n}{\delta_n^2 + \left(\frac{\gamma_n}{2}\right)^2} \sum_{i=1}^{N_{ind}} \left(g_n^{(ji)}\right)^* g_n^{(ki)}. \quad (3.158)$$

Les équations (3.153) et (3.156) sont valables pour tout opérateur système ne faisant pas intervenir les opérateurs de cavités $\hat{b}_n^{(i)}(t)$ et $\hat{b}_n^{(i)\dagger}(t)$ du fait qu'ils ont été éliminés. A partir de maintenant nous supposons que l'ensemble relatif aux pseudo-modes de cavité a été éliminé et donc que le système se décompose uniquement sur la base des émetteurs.

3.B.2 Équation maîtresse

Nous introduisons maintenant la matrice densité $\hat{\rho}(t)$ définie sur l'ensemble $\mathcal{S} \oplus \mathcal{E}$ pour laquelle nous voulons déterminer l'équation maîtresse. Nous définissons tout d'abord la valeur moyenne de l'opérateur \hat{X}_S comme étant

$$\langle \hat{X}_S \rangle (t) = \text{Tr} \left\{ \hat{X}_S \hat{\rho}(t) \right\} = \text{Tr} \left\{ \hat{X}_S(t) \hat{\rho}(t_0) \right\}, \quad (3.159)$$

où Tr désigne la trace sur l'ensemble complet $\mathcal{S} \oplus \mathcal{E}$. On admet qu'au temps initial $t = t_0$, la matrice densité peut se décomposer sur le système et l'environnement ainsi :

$$\hat{\rho}(t_0) = \hat{\rho}_S(t_0) \otimes \hat{\rho}_E(t_0), \quad (3.160)$$

où $\hat{\rho}_S(t_0) = \text{Tr}_E \{ \hat{\rho}(t_0) \}$ et $\hat{\rho}_E(t_0) = \text{Tr}_S \{ \hat{\rho}(t_0) \}$. Les termes Tr_E et Tr_S représentent respectivement la trace partielle sur l'environnement et le système. Nous admettons de plus que $\hat{\rho}_S(t_0)$ se décompose uniquement sur l'ensemble associé aux émetteurs afin que l'élimination adiabatique soit raisonnable. En dérivant l'équation (3.159) nous obtenons

$$\frac{\partial}{\partial t} \langle \hat{X}_S \rangle (t) = \text{Tr} \left\{ \hat{X}_S \frac{\partial \hat{\rho}(t)}{\partial t} \right\} = \text{Tr} \left\{ \frac{\partial \hat{X}_S(t)}{\partial t} \hat{\rho}(t_0) \right\}. \quad (3.161)$$

En utilisant la relation (3.156) nous pouvons calculer le dernier élément de l'égalité (3.161) :

$$\begin{aligned} \text{Tr} \left\{ \frac{\partial \hat{X}_S(t)}{\partial t} \hat{\rho}(t_0) \right\} &= i \sum_{j=1}^{N_e} \sum_{k=1}^{N_e} \Delta_{jk} \left(\text{Tr} \left\{ \hat{X}_S(t) \hat{\sigma}_+^{(k)}(t) \hat{\sigma}_-^{(j)}(t) \hat{\rho}(t_0) \right\} - \text{Tr} \left\{ \hat{\sigma}_+^{(k)}(t) \hat{\sigma}_-^{(j)}(t) \hat{X}_S(t) \hat{\rho}(t_0) \right\} \right) \\ &- \frac{i}{\hbar} \sum_{n=1}^{+\infty} \sum_{i=1}^{N_{ind}} \text{Tr} \left\{ \left[\hat{X}_S(t), \hat{H}_{\emptyset,n}^{(i)}(t) \right] \hat{\rho}(t_0) \right\} + \sum_{n=1}^{+\infty} \sum_{i=1}^{N_{ind}} \text{Tr} \left\{ \hat{\mathcal{D}}_{\emptyset,n}^{(i)} \left(\hat{X}_S(t) \right) \hat{\rho}(t_0) \right\} \\ &+ \sum_{j=1}^{N_e} \sum_{k=1}^{N_e} \Gamma_{jk} \left(\text{Tr} \left\{ \hat{\sigma}_+^{(k)}(t) \hat{X}_S(t) \hat{\sigma}_-^{(j)}(t) \hat{\rho}(t_0) \right\} \right) \\ &- \sum_{j=1}^{N_e} \sum_{k=1}^{N_e} \frac{\Gamma_{jk}}{2} \left(\text{Tr} \left\{ \hat{\sigma}_+^{(k)}(t) \hat{\sigma}_-^{(j)}(t) \hat{X}_S(t) \hat{\rho}(t_0) \right\} + \text{Tr} \left\{ \hat{X}_S(t) \hat{\sigma}_+^{(k)}(t) \hat{\sigma}_-^{(j)}(t) \hat{\rho}(t_0) \right\} \right). \end{aligned} \quad (3.162)$$

L'expression de la moyenne des termes $\left[\hat{X}_S(t), \hat{H}_{\emptyset,n}^{(i)}(t) \right]$ et $\hat{\mathcal{D}}_{\emptyset,n}^{(i)} \left(\hat{X}_S(t) \right)$ peut se simplifier en prenant comme condition initiale sur l'environnement $\hat{\rho}_E(t_0) = |\emptyset_E\rangle\langle\emptyset_E|$. D'après la définition (2.206), on voit que les opérateurs de bain intégré $\hat{c}_{\emptyset,n}^{(i)}(t)$ et $\hat{c}_{\emptyset,n}^{(i)\dagger}(t)$ s'expriment uniquement en fonction des opérateurs de bain $\hat{c}_{\omega,n}^{(i)}$ et $\hat{c}_{\omega,n}^{(i)\dagger}$. Leur action est donc réduite à l'espace environnement \mathcal{E} ce qui induit que ces opérateurs commutent avec la matrice densité réduite $\hat{\rho}_S(t)$ quel que soit l'instant t . En utilisant la définition (2.206) on peut déterminer l'action de $\hat{c}_{\emptyset,n}^{(i)}(t)$ et $\hat{c}_{\emptyset,n}^{(i)\dagger}(t)$ sur $\hat{\rho}(t_0)$ en considérant que $\hat{\rho}_E(t_0) = |\emptyset_E\rangle\langle\emptyset_E|$:

$$\begin{aligned} \hat{c}_{\emptyset,n}^{(i)}(t) \hat{\rho}(t_0) &= \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int d\omega \hat{c}_{\omega,n}^{(i)} |\emptyset_E\rangle\langle\emptyset_E| e^{-i\omega(t-t_0)} \hat{\rho}_S(t_0) = 0, \\ \hat{\rho}(t_0) \hat{c}_{\emptyset,n}^{(i)\dagger}(t) &= \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int d\omega \hat{\rho}_S(t_0) |\emptyset_E\rangle\langle\emptyset_E| \hat{c}_{\omega,n}^{(i)\dagger} e^{-i\omega(t-t_0)} = 0. \end{aligned} \quad (3.163)$$

Il en résulte que tout opérateur $\hat{A}(t)$ de $[\hat{X}_S(t), \hat{H}_{\varnothing,n}^{(i)}(t)]$ et $\hat{D}_{\varnothing,n}^{(i)}(\hat{X}_S(t))$ pouvant s'écrire en fonction d'un opérateur quelconque $\hat{Y}(t)$ ainsi

$$\hat{A}(t) = \begin{cases} \hat{c}_{\varnothing,n}^{(i)\dagger}(t)\hat{Y}(t) & \text{ou} \\ \hat{Y}(t)\hat{c}_{\varnothing,n}^{(i)}(t) \end{cases} \quad (3.164)$$

donne l'élément nul lorsqu'il s'applique sur $\hat{\rho}(t_0)$. À partir des relations (3.154) et (3.157), nous en déduisons que

$$\hat{D}_{\varnothing,n}^{(i)}(\hat{X}_S(t))\hat{\rho}(t_0) = \frac{\gamma_n^{3/2}}{2(\delta_n^2 + (\frac{\gamma_n}{2})^2)} \left(\sum_{j=1}^{N_e} g_n^{(ji)}\hat{\sigma}_+^{(j)}(t)\hat{c}_{\varnothing,n}^{(i)}(t)\hat{X}_S(t) + (g_n^{(ji)})^* \hat{X}_S(t)\hat{c}_{\varnothing,n}^{(i)\dagger}(t)\hat{\sigma}_-^{(j)}(t) \right) \hat{\rho}(t_0) \quad (3.165)$$

et

$$[\hat{X}_S(t), \hat{H}_{\varnothing,n}^{(i)}(t)]\hat{\rho}(t_0) = -\frac{i\hbar(\gamma_n)^{3/2}}{2(\delta_n^2 + (\frac{\gamma_n}{2})^2)} \left(\sum_{j=1}^{N_e} g_n^{(ji)}\hat{\sigma}_+^{(j)}(t)\hat{c}_{\varnothing,n}^{(i)}(t)\hat{X}_S(t) + (g_n^{(ji)})^* \hat{X}_S(t)\hat{c}_{\varnothing,n}^{(i)\dagger}(t)\hat{\sigma}_-^{(j)}(t) \right) \hat{\rho}(t_0) \quad (3.166)$$

En injectant les formules (3.165) et (3.166) dans (3.162) on obtient

$$\begin{aligned} \text{Tr} \left\{ \frac{\partial \hat{X}_S(t)}{\partial t} \hat{\rho}(t_0) \right\} &= i \sum_{j=1}^{N_e} \sum_{k=1}^{N_e} \Delta_{jk} \left(\text{Tr} \left\{ \hat{X}_S(t)\hat{\sigma}_+^{(k)}(t)\hat{\sigma}_-^{(j)}(t)\hat{\rho}(t_0) \right\} - \text{Tr} \left\{ \hat{\sigma}_+^{(k)}(t)\hat{\sigma}_-^{(j)}(t)\hat{X}_S(t)\hat{\rho}(t_0) \right\} \right) \\ &+ \sum_{j=1}^{N_e} \sum_{k=1}^{N_e} \Gamma_{jk} \left(\text{Tr} \left\{ \hat{\sigma}_+^{(k)}(t)\hat{X}_S(t)\hat{\sigma}_-^{(j)}(t)\hat{\rho}(t_0) \right\} \right) \\ &- \sum_{j=1}^{N_e} \sum_{k=1}^{N_e} \frac{\Gamma_{jk}}{2} \left(\text{Tr} \left\{ \hat{\sigma}_+^{(k)}(t)\hat{\sigma}_-^{(j)}(t)\hat{X}_S(t)\hat{\rho}(t_0) \right\} + \text{Tr} \left\{ \hat{X}_S(t)\hat{\sigma}_+^{(k)}(t)\hat{\sigma}_-^{(j)}(t)\hat{\rho}(t_0) \right\} \right). \end{aligned} \quad (3.167)$$

En appliquant la définition (2.199) sur les opérateurs du système $\hat{X}_S(t)$, $\hat{\sigma}_+^{(k)}(t)$ et $\hat{\sigma}_-^{(j)}(t)$ et en utilisant les propriétés de conservation de la trace par permutation circulaire (c'est à dire $\text{Tr}\{ABC\} = \text{Tr}\{BCA\} = \text{Tr}\{CAB\}$), nous pouvons travailler avec les opérateurs en représentation de Schrödinger et reporter la dépendance temporelle sur la matrice densité. Nous avons alors

$$\begin{aligned} \text{Tr} \left\{ \frac{\partial \hat{X}_S(t)}{\partial t} \hat{\rho}(t_0) \right\} &= i \sum_{j=1}^{N_e} \sum_{k=1}^{N_e} \Delta_{jk} \left(\text{Tr} \left\{ \hat{X}_S \hat{\sigma}_+^{(k)} \hat{\sigma}_-^{(j)} \hat{\rho}(t) \right\} - \text{Tr} \left\{ \hat{X}_S \hat{\rho}(t) \hat{\sigma}_+^{(k)} \hat{\sigma}_-^{(j)} \right\} \right) \\ &+ \sum_{j=1}^{N_e} \sum_{k=1}^{N_e} \Gamma_{jk} \left[\text{Tr} \left\{ \hat{X}_S \hat{\sigma}_-^{(j)} \hat{\rho}(t) \hat{\sigma}_+^{(k)} \right\} - \frac{1}{2} \left(\text{Tr} \left\{ \hat{X}_S \hat{\rho}(t) \hat{\sigma}_+^{(k)} \hat{\sigma}_-^{(j)} \right\} + \text{Tr} \left\{ \hat{X}_S \hat{\sigma}_+^{(k)} \hat{\sigma}_-^{(j)} \hat{\rho}(t) \right\} \right) \right], \end{aligned} \quad (3.168)$$

avec $\hat{\rho}(t) = \hat{U}(t, t_0)\hat{\rho}(t_0)\hat{U}^\dagger(t, t_0)$. Les propriétés cycliques de la trace ont aussi été utilisées pour placer l'opérateur \hat{X}_S en première position afin de pouvoir par la suite exploiter une autre propriété utile de la trace. Afin d'éliminer le bain dans le calcul de la trace nous utilisons la propriété suivante

$$\text{Tr} \left\{ \hat{X}_S \hat{\rho}(t) \right\} = \text{Tr}_S \left\{ \hat{X}_S \hat{\rho}_S(t) \right\} \quad (3.169)$$

qui s'applique à n'importe quel opérateur système. L'expression (3.168) se simplifie et donne

$$\text{Tr} \left\{ \frac{\partial \hat{X}_S(t)}{\partial t} \hat{\rho}(t_0) \right\} = \text{Tr}_S \left\{ \hat{X}_S \left[\sum_{j=1}^{N_e} \sum_{k=1}^{N_e} -\frac{i}{\hbar} [\hat{H}_{jk}, \hat{\rho}_S(t)] + \Gamma_{jk} \left(\hat{\sigma}_-^{(j)} \hat{\rho}_S(t) \hat{\sigma}_+^{(k)} - \frac{1}{2} \left\{ \hat{\sigma}_+^{(k)} \hat{\sigma}_-^{(j)}, \hat{\rho}_S(t) \right\} \right) \right] \right\}, \quad (3.170)$$

avec $\hat{H}_{jk} = -\hbar\Delta_{jk}\hat{\sigma}_+^{(k)}\hat{\sigma}_-^{(j)}$. Nous reprenons maintenant le calcul du deuxième terme de l'égalité (3.161). D'après la propriété (3.169) celui-ci devient

$$\begin{aligned} \text{Tr} \left\{ \hat{X}_S \frac{\partial \hat{\rho}(t)}{\partial t} \right\} &= \text{Tr}_S \left\{ \hat{X}_S \frac{\partial \hat{\rho}_S(t)}{\partial t} \right\} \\ &= \text{Tr}_S \left\{ \hat{X}_S \left[\sum_{j=1}^{N_e} \sum_{k=1}^{N_e} -\frac{i}{\hbar} [\hat{H}_{jk}, \hat{\rho}_S(t)] + \Gamma_{jk} \left(\hat{\sigma}_-^{(j)} \hat{\rho}_S(t) \hat{\sigma}_+^{(k)} - \frac{1}{2} \{ \hat{\sigma}_+^{(k)} \hat{\sigma}_-^{(j)}, \hat{\rho}_S(t) \} \right) \right] \right\}. \end{aligned} \quad (3.171)$$

Enfin, l'équation maîtresse de la matrice densité est obtenue à partir de (3.171) en utilisant la propriété suivante : si $\text{Tr}\{AB\} = \text{Tr}\{AC\}$ pour A quelconque, alors $B = C$. L'équation de Linblad s'écrit donc

$$\frac{\partial \hat{\rho}_S(t)}{\partial t} = \sum_{j=1}^{N_e} \sum_{k=1}^{N_e} -\frac{i}{\hbar} [\hat{H}_{jk}, \hat{\rho}_S(t)] + \Gamma_{jk} \left(\hat{\sigma}_-^{(j)} \hat{\rho}_S(t) \hat{\sigma}_+^{(k)} - \frac{1}{2} \{ \hat{\sigma}_+^{(k)} \hat{\sigma}_-^{(j)}, \hat{\rho}_S(t) \} \right). \quad (3.172)$$

Chapitre 4

États habillés en régime de couplage fort

Sommaire

4.1 Réponse spectrale en cavité	86
4.1.1 Modèle	86
4.1.2 Régime de couplage	88
4.2 Réponse spectrale du système hybride émetteur-nanoparticule	92
4.2.1 Profil spectral en champ proche et en champ lointain	92
4.2.2 Représentation des états habillés du système	95
4.2.3 Contribution modale en champ lointain	99
4.3 Couplage collectif fort	100
4.4 Conclusion	107
4.A Densité spectrale et spectre d'émission d'un système hybride émetteurs-nanoparticule	108
4.A.1 Système	108
4.A.2 Densité spectrale	109
4.A.3 Spectre d'émission	111

Le couplage fort signifie que l'interaction lumière-matière devient suffisamment importante pour que des échanges d'énergie réversibles puissent se produire. Dans les structures plasmoniques, le confinement sub-longueur d'onde du rayonnement électromagnétique peut être très important et permet d'atteindre ce régime de couplage malgré les nombreuses pertes par absorption présentes dans ces structures [29, 30, 93]. Lorsqu'il est établi, le régime de couplage fort rend possible le contrôle de la dynamique de l'émission de lumière par blocage de photon [94, 95], ou encore le contrôle cohérent d'émetteurs [67, 68, 96]. Nous pouvons aussi citer la possibilité de contrôler une réaction chimique par couplage fort à un mode confiné de la lumière [97]. Dans ce chapitre, nous analysons le régime de couplage fort dans un système plasmonique comportant une seule excitation et nous montrons l'analogie que l'on peut faire avec le couplage fort en cavité. Ceci nous amènera à construire le modèle de l'atome habillé qui constitue un outil efficace pour décrire le système hybride. Nous discuterons de la caractérisation du couplage fort en champ lointain. Nous commencerons par présenter un modèle simple décrivant le couplage d'un émetteur avec un mode de cavité pour ensuite passer à l'étude du couplage à une nanoparticule métallique. Enfin, nous étendrons l'étude au cas de plusieurs émetteurs couplés à la nanoparticule.

4.1 Réponse spectrale en cavité

Pour introduire cette section, nous commencerons par présenter le modèle utilisé pour calculer la réponse spectrale d'un émetteur en cavité. Ensuite nous étudierons les profils spectraux obtenus selon le régime de couplage faible ou fort qu'il peut exister entre l'émetteur et le mode de cavité. Les différents aspects étudiés dans cette section nous seront utiles pour aborder l'étude du système plasmonique faisant l'objet de la section suivante. Ceci nous permettra de mettre en évidence les analogies et différences entre électrodynamique en cavité et plasmonique quantique.

4.1.1 Modèle

Nous considérons le cas d'un système à deux niveaux où $|g\rangle$ et $|e\rangle$ sont respectivement l'état fondamental et l'état excité de l'émetteur quantique de fréquence de transition ω_0 . Ce dernier est placé à l'intérieur d'une cavité optique délimitée par deux miroir comme illustré sur la figure 4.1(a). Le premier miroir, noté M_1 , sera considéré comme parfait. Le second miroir M_2 est partiellement transparent afin de permettre à l'excitation photonique du mode de cavité de se propager à l'extérieure de celle-ci. Le mode de cavité est caractérisé par la fréquence de résonance ω_c et les fuites γ_c dues à l'imperfection du miroir M_2 . L'excitation photonique est définie par $|1\rangle = \hat{c}^\dagger |\emptyset\rangle$ avec \hat{c}^\dagger l'opérateur bosonique de création du mode de cavité. Le couplage de l'émetteur avec ce mode est donné par $g = \mathbf{d} \cdot \mathbf{E}(\mathbf{r}_d)/\hbar$ où \mathbf{d} est le moment dipolaire de l'émetteur et $\mathbf{E}(\mathbf{r}_d)$ est le champ électrique à la position de l'émetteur dans la cavité. L'ensemble émetteur+cavité constitue le système

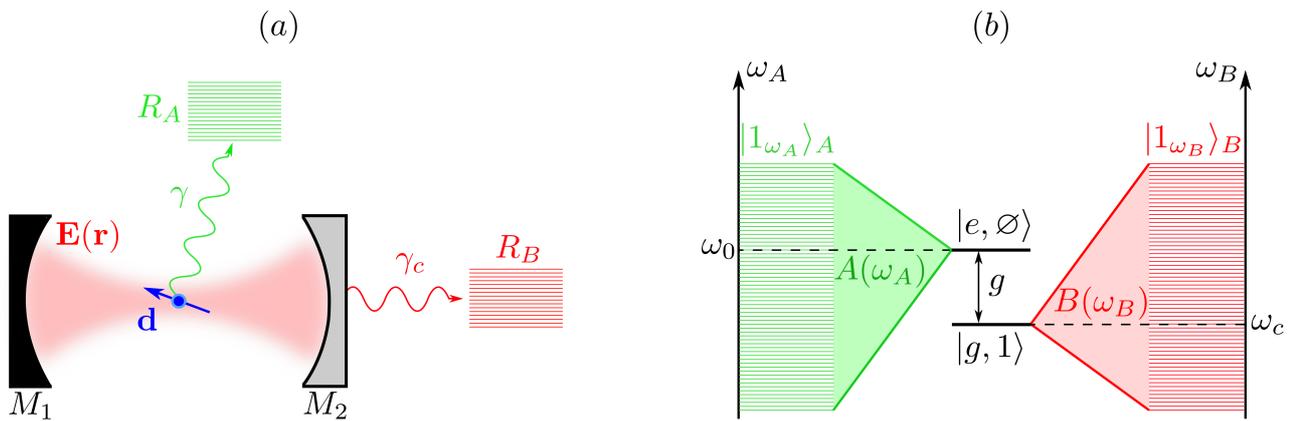


FIGURE 4.1 – Représentation du système étudié en (a). L'émetteur interagit avec un mode spécifique du champ électrique supporté par la cavité. Les deux continua R_A et R_B sont introduits pour décrire la relaxation irréversible de l'émetteur et du mode de cavité. Le schéma d'interaction du système atome+cavité et de son environnement est donné en (b)

à étudier et est défini dans un espace de Hilbert \mathcal{S} . La relaxation de l'émetteur dans l'ensemble des canaux n'incluant pas le mode de cavité (émission spontanée et désexcitation non-radiative) est caractérisée par le taux γ et est dans un premier temps modélisée par un couplage $A(\omega_A)$ à un réservoir R_A . Celui-ci comprend un continuum d'oscillateurs de fréquence ω_A définis par les opérateurs bosoniques \hat{r}_{A,ω_A} . L'excitation photonique liée au mode de cavité est quant à elle couplée à un second réservoir R_B via le couplage $B(\omega_B)$. Les opérateurs bosoniques de création et d'annihilation de ce second bain d'oscillateurs sont notés \hat{r}_{B,ω_B} . Ces deux réservoirs constituent l'environnement et sont décrits dans un espace de Hilbert \mathcal{E} . L'Hamiltonien total est défini dans l'espace $\mathcal{S} \oplus \mathcal{E}$ et s'écrit

$$\hat{H} = \hat{H}_S + \hat{H}_E + \hat{H}_{SE}^{(I)}, \quad (4.1)$$

$$\hat{H}_S = \hbar\omega_0 \hat{\sigma}_+ \hat{\sigma}_- + \hbar\omega_c \hat{c}^\dagger \hat{c} + \hbar g (\hat{\sigma}_+ \hat{c} + \hat{\sigma}_- \hat{c}^\dagger) \quad (4.2)$$

$$\hat{H}_E = \int d\omega_A \hbar\omega_A \hat{r}_{A,\omega_A}^\dagger \hat{r}_{A,\omega_A} + \int d\omega_B \hbar\omega_B \hat{r}_{B,\omega_B}^\dagger \hat{r}_{B,\omega_B}, \quad (4.3)$$

$$\hat{H}_{SE}^{(I)} = i\hbar \int d\omega_A A(\omega_A) (\hat{r}_{A,\omega_A}^\dagger \hat{\sigma}_- - \hat{\sigma}_+ \hat{r}_{A,\omega_A}) + i\hbar \int d\omega_B B(\omega_B) (\hat{r}_{B,\omega_B}^\dagger \hat{c} - \hat{c}^\dagger \hat{r}_{B,\omega_B}), \quad (4.4)$$

avec $\hat{\sigma}_+ = |e\rangle\langle g|$ et $\hat{\sigma}_- = |g\rangle\langle e|$ les opérateurs de transition de l'émetteur quantique. Cet Hamiltonien est dans l'approximation résonnante complète (ou Rotating wave approximation, RWA) dans le sens où on suppose qu'au plus un seul photon peut être émis dans la cavité à partir de l'état $|e\rangle$ et qu'au plus un seul photon peut être émis par la cavité dans le bain. On peut définir la fonction d'onde dans la base à une excitation :

$$|\psi(t)\rangle = C_{e,\emptyset}(t)|e,\emptyset\rangle|\emptyset\rangle_A|\emptyset\rangle_B + C_{g,1}(t)|g,1\rangle|\emptyset\rangle_A|\emptyset\rangle_B + \int d\omega_A C_A(t,\omega_A) e^{-i\omega_A t} |g,\emptyset\rangle|1_{\omega_A}\rangle_A|\emptyset\rangle_B + \int d\omega_B C_B(t,\omega_B) e^{-i\omega_B t} |g,\emptyset\rangle|\emptyset\rangle_A|1_{\omega_B}\rangle_B, \quad (4.5)$$

où l'excitation sur chaque continuum de fréquence R_A et R_B est définie par $|1_{\omega_A}\rangle_A = \hat{r}_{A,\omega_A}^\dagger|\emptyset\rangle_A$ et $|1_{\omega_B}\rangle_B = \hat{r}_{B,\omega_B}^\dagger|\emptyset\rangle_B$. Par exemple, $|e,\emptyset\rangle|\emptyset\rangle_A|\emptyset\rangle_B$ décrit l'atome excité dans la cavité sans photon ($|e,\emptyset\rangle$) et aucune excitation dans les réservoirs R_A et R_B . En projetant l'Hamiltonien sur la fonction d'onde nous obtenons les équations de la dynamique suivantes

$$\dot{C}_{e,\emptyset}(t) = -i\omega_0 C_{e,\emptyset}(t) - igC_{g,1}(t) - \int d\omega_A A(\omega_A) C_A(t,\omega_A) e^{-i\omega_A t}, \quad (4.6)$$

$$\dot{C}_{g,1}(t) = -i\omega_c C_{g,1}(t) - igC_{e,\emptyset}(t) - \int d\omega_B B(\omega_B) C_B(t,\omega_B) e^{-i\omega_B t}, \quad (4.7)$$

$$\dot{C}_A(t,\omega_A) = A(\omega_A) C_{e,\emptyset}(t) e^{i\omega_A t}, \quad (4.8)$$

$$\dot{C}_B(t,\omega_B) = B(\omega_B) C_{g,1}(t) e^{i\omega_B t}, \quad (4.9)$$

associées au schéma d'interaction de la figure 4.1(b). Chaque continuum R_A et R_B constitue deux parties distinctes de la réponse spectrale du système. Nous définissons d'abord la densité spectrale $D(\omega_A)$ comme étant la probabilité de trouver une excitation sur le mode de vibration $|1_{\omega_A}\rangle_A$ du réservoir R_A lorsque le système a atteint l'état stationnaire [98] :

$$D(\omega_A) = \lim_{t \rightarrow +\infty} |C_A(t,\omega_A)|^2. \quad (4.10)$$

En intégrant formellement l'équation (4.8) avec comme condition initiale $C_A(0,\omega_A) = 0$ et en appliquant la limite en $+\infty$ nous obtenons

$$D(\omega_A) = |A(\omega_A)|^2 \left| \int_0^{+\infty} C_{e,\emptyset}(t) e^{i\omega_A t} dt \right|^2. \quad (4.11)$$

Nous appliquons maintenant l'approximation de Markov consistant à admettre que le couplage $A(\omega_A)$, induisant un comportement irréversible de relaxation de l'émetteur dans son continuum R_A , varie très peu dans le domaine de fréquence comprenant ω_0 et ω_c et est donné par $A(\omega_A) \approx A(\omega_0) = (\gamma/2\pi)^{1/2}$. De ce fait, la densité spectrale est proportionnelle au module carré de la transformée de Fourier de l'amplitude de probabilité $C_{e,\emptyset}(t)$:

$$D(\omega_A) = \frac{\gamma}{2\pi} \left| \int_0^{+\infty} C_{e,\emptyset}(t) e^{i\omega_A t} dt \right|^2. \quad (4.12)$$

La seconde partie de la réponse spectrale est le spectre d'émission en sortie de cavité noté $S_c(\omega_B)$. Il est associé à la probabilité de trouver le système dans l'état $|1_{\omega_B}\rangle_B$ en régime stationnaire :

$$S_c(\omega_B) = \lim_{t \rightarrow +\infty} |C_B(t,\omega_B)|^2. \quad (4.13)$$

De la même manière que pour la détermination de $D(\omega_A)$, nous intégrons formellement l'équation (4.9) et nous trouvons que

$$S_c(\omega_B) = \frac{\gamma_c}{2\pi} \left| \int_0^{+\infty} C_{g,1}(t) e^{i\omega_B t} dt \right|^2, \quad (4.14)$$

où nous avons supposé que le couplage $B(\omega_B)$ était suffisamment plat pour pouvoir le considérer comme constant et donné par $B(\omega_B) \approx B(\omega_c) = (\gamma_c/2\pi)^{1/2}$.

4.1.2 Régime de couplage

L'étude de la dynamique temporelle des amplitudes de probabilités va nous permettre de remonter à la réponse spectrale de ce système. En injectant la forme intégrée des équations (4.8) et (4.9) dans les équations (4.6) et (4.7), nous trouvons

$$\dot{C}_{e,\emptyset}(t) = -i\omega_0 C_{e,\emptyset}(t) - igC_{g,1}(t) - \int_0^t dt' C_{e,\emptyset}(t') \int d\omega_A A(\omega_A) e^{-i\omega_A(t-t')}, \quad (4.15)$$

$$\dot{C}_{g,1}(t) = -i\omega_c C_{g,1}(t) - igC_{e,\emptyset}(t) - \int_0^t dt' C_{g,1}(t') \int d\omega_B B(\omega_B) e^{-i\omega_B(t-t')}. \quad (4.16)$$

Nous appliquons de nouveau l'approximation de Markov ayant servi à déterminer les relations (4.12) et (4.14). De plus le domaine d'intégration sur ω est étendu à $]-\infty, +\infty[$. Cette approximation est d'autant meilleure que les fréquences ω_0 et ω_c sont éloignées des basses fréquences $\omega \approx 0$. En tenant compte des propriétés (2.208) et (2.209), les équations de la dynamique des amplitudes de probabilité s'écrivent

$$\dot{C}_{e,\emptyset}(t) = -i\left(\omega_0 - i\frac{\gamma}{2}\right) C_{e,\emptyset}(t) - igC_{g,1}(t), \quad (4.17)$$

$$\dot{C}_{g,1}(t) = -i\left(\omega_c - i\frac{\gamma_c}{2}\right) C_{g,1}(t) - igC_{e,\emptyset}(t), \quad (4.18)$$

et font apparaître les taux de relaxations respectifs γ et γ_c de l'émetteur et de l'excitation photonique du mode de cavité. À partir de ce nouveau système d'équations, nous pouvons déduire l'équation de Schrödinger dissipative suivante :

$$i\hbar \frac{d}{dt} |\psi(t)\rangle = \hat{H}_{eff} |\psi(t)\rangle, \quad (4.19)$$

avec

$$\hat{H}_{eff} = \hbar \begin{pmatrix} \omega_0 - i\frac{\gamma}{2} & g \\ g & \omega_c - i\frac{\gamma_c}{2} \end{pmatrix}, \quad (4.20)$$

$$|\psi(t)\rangle = C_{e,\emptyset}(t)|e, \emptyset\rangle + C_{g,1}(t)|g, 1\rangle. \quad (4.21)$$

Sur la base de ce nouvel Hamiltonien nous allons pouvoir distinguer deux régimes de couplage :

- le couplage faible défini par $g \ll \gamma + \gamma_c$ et pour lequel les processus de relaxations irréversibles sont majoritaires,
- le couplage fort défini par $g \gg \gamma + \gamma_c$ et dont la dynamique est gouvernée principalement par des oscillations de Rabi (amorties).

Couplage faible

À partir de l'équation de Schrödinger (4.19), nous pouvons écrire les équations de la dynamique :

$$i\dot{\tilde{C}}_{e,\emptyset}(t) = -i\frac{\gamma}{2}\tilde{C}_{e,\emptyset}(t) + g\tilde{C}_{g,1}(t), \quad (4.22)$$

$$i\dot{\tilde{C}}_{g,1}(t) = g\tilde{C}_{e,\emptyset}(t) + \left(\omega_c - \omega_0 - i\frac{\gamma_c}{2}\right)\tilde{C}_{g,1}(t), \quad (4.23)$$

avec $\tilde{C}_{e,\emptyset}(t) = C_{e,\emptyset}(t) e^{i\omega_0 t}$ et $\tilde{C}_{g,1}(t) = C_{g,1}(t) e^{i\omega_0 t}$. La condition de couplage faible induit que la variation de population sur l'état $|g, 1\rangle$ est lente. Il est donc possible d'éliminer adiabatiquement cet état, c'est-à-dire $\dot{\tilde{C}}_{g,1}(t) \approx 0$, comme nous l'avons déjà vu dans la section 2.4. On a alors

$$\tilde{C}_{g,1}(t) \approx \frac{-g\tilde{C}_{e,\emptyset}(t)}{(\omega_c - \omega_0) - i\frac{\gamma_c}{2}}, \quad (4.24)$$

ce qui permet de ramener le système d'équations (4.22) et (4.23) à une seule :

$$i\dot{\tilde{C}}_{e,\emptyset}(t) = -\left(i\frac{\gamma}{2} + \frac{g^2}{\omega_c - \omega_0 - i\frac{\gamma_c}{2}}\right)\tilde{C}_{e,\emptyset}(t). \quad (4.25)$$

On trouve alors la solution :

$$C_{e,\emptyset}(t) = C_{e,\emptyset}(0) e^{i(\delta\omega - \omega_0)t} e^{-\frac{\Gamma}{2}t}, \quad (4.26)$$

où $\delta\omega$ et Γ sont respectivement le décalage de Lamb et le nouveau taux de décroissance en présence de la cavité avec

$$\delta\omega = \frac{g^2(\omega_c - \omega_0)}{(\omega_c - \omega_0)^2 + \left(\frac{\gamma_c}{2}\right)^2}, \quad (4.27)$$

$$\Gamma = \gamma + \frac{g^2\gamma_c}{(\omega_c - \omega_0)^2 + \left(\frac{\gamma_c}{2}\right)^2}. \quad (4.28)$$

La formule (4.26) peut être injectée dans la définition de la densité spectrale (4.12). On trouve alors une fonction lorentzienne :

$$D(\omega_A) = \frac{\gamma}{2\pi} \frac{|C_{e,\emptyset}(0)|^2}{[\omega_A - (\omega_0 - \delta\omega)]^2 + \left(\frac{\Gamma}{2}\right)^2}, \quad (4.29)$$

centrée en $(\omega_0 - \delta\omega)$ et de largeur à mi-hauteur Γ . D'après la relation (4.24), le spectre en sortie de cavité est proportionnel à $D(\omega_B)$:

$$S_c(\omega_B) = \frac{\gamma_c}{\gamma} \frac{g^2}{(\omega_c - \omega_0)^2 + \left(\frac{\gamma_c}{2}\right)^2} D(\omega_B). \quad (4.30)$$

La figure 4.2 montre l'évolution des populations $P_e(t) = |C_{e,\emptyset}(t)|^2$ et $P_g(t) = |C_{g,1}(t)|^2$ et les densités spectrales $D(\omega_A)$ pour un émetteur initialement excité. Les paramètres du système sont normalisés par rapport aux pertes γ_c et sont choisis pour être en accord avec les paramètres du système plasmonique que l'on verra dans la section suivante. La fréquence de transition ω_0 est égale à la fréquence de résonance de la cavité $\omega_c = 50\gamma_c$. On considère $\gamma = \gamma_c/5$. Pour les figures (a,b), le couplage est caractérisé par $g/(\gamma + \gamma_c) = 0.042$ et on constate que les conditions de couplage faible sont vérifiées. En effet la variation de population de l'état $|g, 1\rangle$, illustrée en rouge, est très faible et la population de l'état $|e, \emptyset\rangle$ suit une loi exponentielle décroissante de taux Γ selon (4.26). Nous constatons aussi que le spectre en noir, calculé à l'aide de la formule (4.29), est en accord avec le spectre exact en vert (obtenu par résolution numérique de l'équation de Schrödinger (4.19)). Pour les figures (c,d) et (e,f), nous remarquons que lorsque g augmente, l'état $|g, 1\rangle$ subit des variations de plus en plus importantes induisant une modification de la dynamique de l'état $|e, \emptyset\rangle$ qui s'éloigne de la décroissance exponentielle. Plus particulièrement, lorsque g est du même ordre de grandeur que γ_c , la courbe exacte de la densité spectrale de la figure (f) révèle la naissance d'une levée de dégénérescence des deux modes propres du système, ce qui est caractéristique du couplage fort que nous traitons ci-dessous.

Couplage fort

Dans cette partie, on exprime la dynamique des amplitudes de probabilités sur les deux modes propres du système à partir de la diagonalisation de l'Hamiltonien (4.20). Du fait que l'Hamiltonien n'est pas hermitien, les valeurs propres associées sont complexes. Nous pouvons d'abord les définir de telle sorte que $H|\Pi_{\pm}^D\rangle = \lambda_{\pm}|\Pi_{\pm}^D\rangle$ avec $|\Pi_{\pm}^D\rangle$ les vecteurs propres droits [99]. Nous trouvons

$$\lambda_{\pm} = \frac{1}{2} \left(\omega_0 + \omega_c - i\frac{\gamma + \gamma_c}{2} \right) \pm \frac{1}{2} \sqrt{\left(\omega_c - \omega_0 - i\frac{\gamma_c - \gamma}{2} \right)^2 + 4g^2}. \quad (4.31)$$

Les valeurs propres complexes conjuguées sont quant à elles définies par $H^\dagger|\Pi_{\pm}^G\rangle = \lambda_{\pm}^*|\Pi_{\pm}^G\rangle$ avec $|\Pi_{\pm}^G\rangle$ les vecteurs propres gauches. Elles s'écrivent

$$\lambda_{\pm}^* = \frac{1}{2} \left(\omega_0 + \omega_c + i\frac{\gamma + \gamma_c}{2} \right) \pm \frac{1}{2} \sqrt{\left(\omega_c - \omega_0 + i\frac{\gamma_c - \gamma}{2} \right)^2 + 4g^2}. \quad (4.32)$$

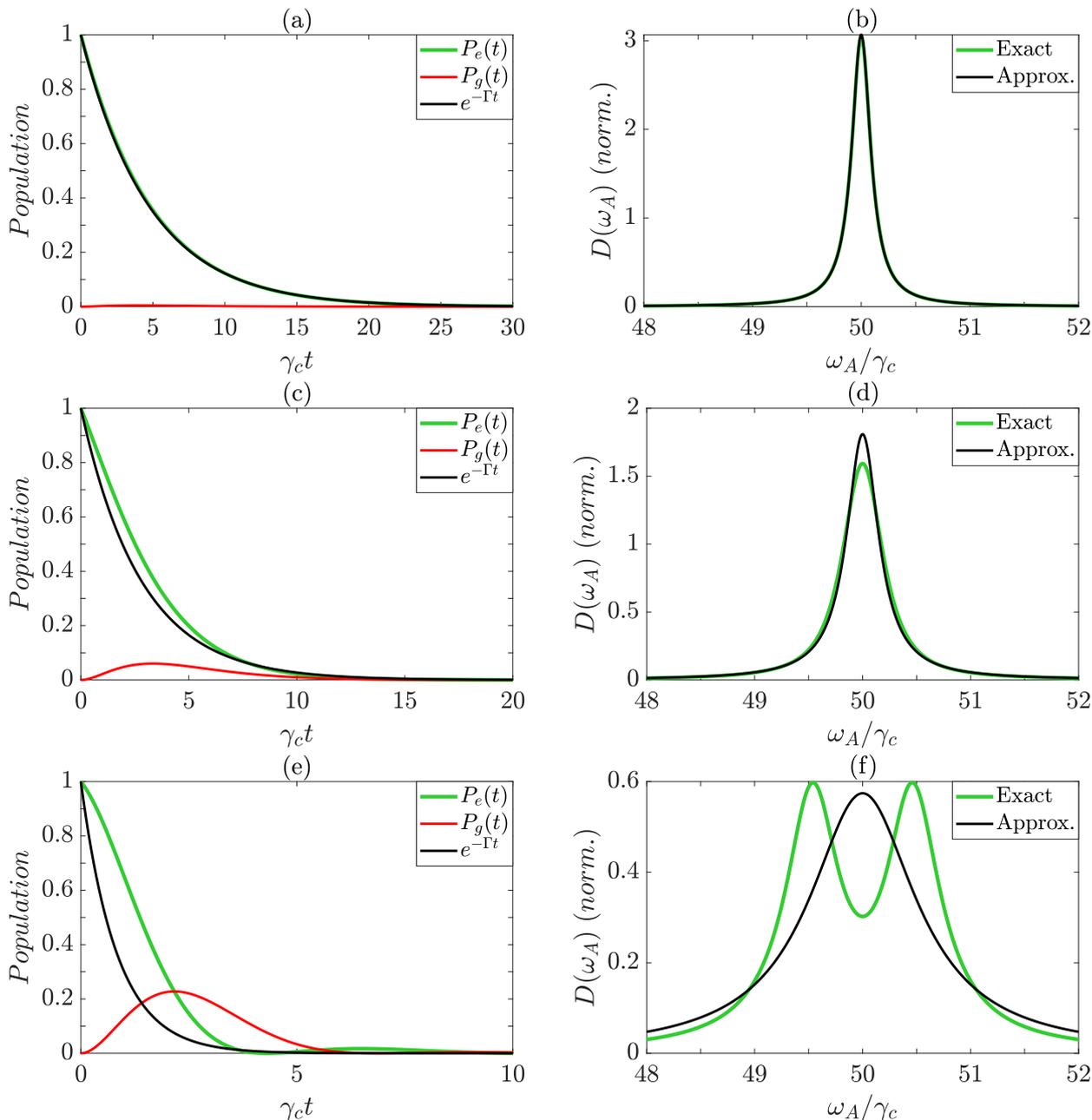


FIGURE 4.2 – Évolution des populations et densité spectrale $D(\omega_A)$ pour différentes valeurs de couplage : $g = 0.05\gamma_c$ pour (a,b), $g = 0.2\gamma_c$ pour (c,d) et $g = 0.5\gamma_c$ pour (e,f). Le taux de relaxation de l'émetteur est $\gamma = \gamma_c/5$ et la fréquence de transition ω_0 est fixée à la fréquence de résonance $\omega_c = 50\gamma_c$. Dans la colonne de droite, on compare le résultat exact (4.12) (déterminé par simulation numérique) avec la formule (4.29) obtenue en couplage faible. Les spectres sont normalisés par rapport à leurs aires $\int D(\omega_A)d\omega_A$.

À chacun de ces modes propres nous définissons une fréquence $\omega_{\pm} = \Re[\lambda_{\pm}]$ et des pertes $\gamma_{\pm} = -2\Im[\lambda_{\pm}]$

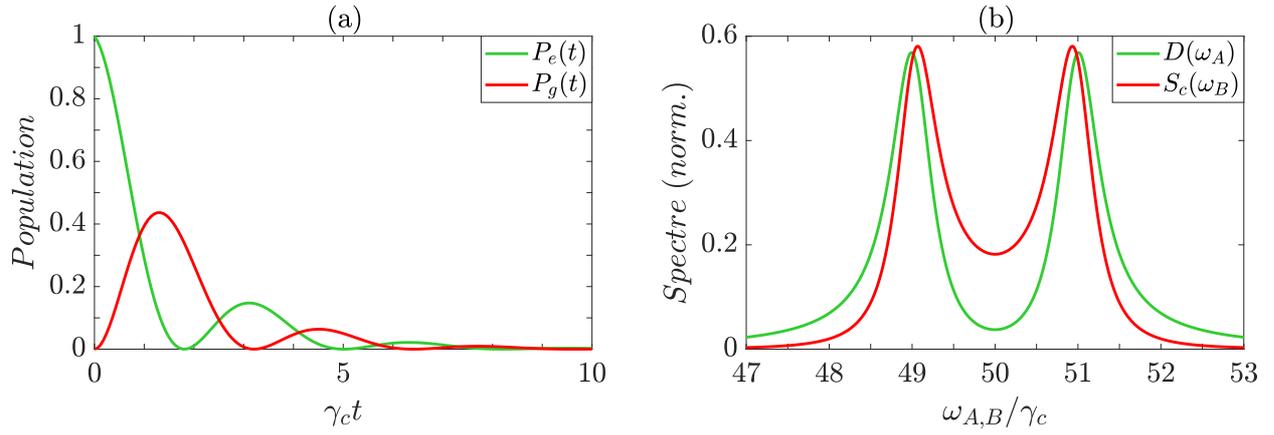


FIGURE 4.3 – (a) Dynamique des populations des deux états du système en (a) et spectre correspondant en (b) pour un émetteur initialement excité et couplé fortement à la cavité. Toutes les quantités sont normalisées par rapport à γ_c : $\gamma = \gamma_c/5$, $g = \gamma_c$ et $\omega_0 = \omega_c = 50\gamma_c$, exceptés les spectres qui sont normalisés par rapport à leurs aires respectives.

où la partie réelle et la partie imaginaire sont données par

$$\Re[\lambda_{\pm}] = \frac{\lambda_{\pm} + \lambda_{\pm}^*}{2}, \quad (4.33)$$

$$= \frac{\omega_0 + \omega_c}{2} \pm \frac{1}{4} \sqrt{\left(\omega_c - \omega_0 - i\frac{\gamma_c - \gamma}{2}\right)^2 + 4g^2} \pm \frac{1}{4} \sqrt{\left(\omega_c - \omega_0 + i\frac{\gamma_c - \gamma}{2}\right)^2 + 4g^2}, \quad (4.34)$$

$$\Im[\lambda_{\pm}] = \frac{\lambda_{\pm} - \lambda_{\pm}^*}{2i}, \quad (4.35)$$

$$= -\frac{\gamma + \gamma_c}{4} \pm \frac{1}{4i} \sqrt{\left(\omega_c - \omega_0 - i\frac{\gamma_c - \gamma}{2}\right)^2 + 4g^2} \mp \frac{1}{4i} \sqrt{\left(\omega_c - \omega_0 + i\frac{\gamma_c - \gamma}{2}\right)^2 + 4g^2}. \quad (4.36)$$

La fonction d'onde peut s'exprimer sur la base des vecteurs propres droits de l'hamiltonien ainsi :

$$|\psi(t)\rangle = \langle \Pi_+^L | \psi(0) \rangle e^{-i\lambda_+ t} | \Pi_+^R \rangle + \langle \Pi_-^L | \psi(0) \rangle e^{-i\lambda_- t} | \Pi_-^R \rangle, \quad (4.37)$$

où $|\psi(0)\rangle$ est la condition initiale du système. Pour un émetteur initialement excité on trouve que les amplitudes de probabilités s'écrivent selon les deux modes propres du système :

$$C_{e,\emptyset}(t) = A_+ e^{-i\lambda_+ t} + A_- e^{-i\lambda_- t}, \quad (4.38)$$

$$C_{g,1}(t) = B_+ e^{-i\lambda_+ t} + B_- e^{-i\lambda_- t}, \quad (4.39)$$

avec $A_{\pm} = \langle \Pi_{\pm}^L | e, \emptyset \rangle \langle e, \emptyset | \Pi_{\pm}^R \rangle$ et $B_{\pm} = \langle \Pi_{\pm}^L | e, \emptyset \rangle \langle g, 1 | \Pi_{\pm}^R \rangle$. En utilisant les définitions (4.12) et (4.14), nous trouvons l'expression analytique de $D(\omega_A)$ et $S_c(\omega_B)$:

$$D(\omega_A) = \frac{\gamma}{2\pi} \left| \frac{A_+}{\omega_A - \omega_+ + i\frac{\gamma_+}{2}} + \frac{A_-}{\omega_A - \omega_- + i\frac{\gamma_-}{2}} \right|^2 \quad (4.40)$$

$$S_c(\omega_B) = \frac{\gamma_c}{2\pi} \left| \frac{B_+}{\omega_B - \omega_+ + i\frac{\gamma_+}{2}} + \frac{B_-}{\omega_B - \omega_- + i\frac{\gamma_-}{2}} \right|^2, \quad (4.41)$$

révélaant la présence de fonctions lorentziennes complexes associées à chacun des modes propres + et -. Lorsque l'émetteur est résonant avec le mode de cavité ($\omega_0 = \omega_c$), la levée de dégénérescence est symétrique comme on le voit sur la figure 4.3 (b) et la fréquence de Rabi Ω associée peut être approximée par :

$$\Omega \approx \omega_+ - \omega_- = 2\sqrt{g^2 - \left(\frac{\gamma_c - \gamma}{4}\right)^2}. \quad (4.42)$$

Les pertes associées à chaque mode sont égales et prennent la valeur approchée

$$\gamma_+ = \gamma_- \approx \frac{\gamma + \gamma_c}{2}. \quad (4.43)$$

Le régime de couplage fort est atteint pour $\Omega > \gamma_+, \gamma_-$. Le signal détecté dans le réservoir R_A caractérise l'émission de l'émetteur couplé à la cavité tandis que le signal en R_B est filtré par le mode à fuite de cavité.

4.2 Réponse spectrale du système hybride émetteur-nanoparticule

Nous allons voir dans cette section comment le modèle effectif développé dans le chapitre 2 peut être mis à contribution pour caractériser un système plasmonique particulier dans le domaine spectral. Nous commençons par définir la réponse spectrale exacte du système qui nous sert de référence par la suite pour confronter les résultats issus du modèle effectif.

4.2.1 Profil spectral en champ proche et en champ lointain

Nous nous appuyons dans un premier temps sur le modèle initial développé par Welsch [45] qui est décrit brièvement dans la sous-section 2.2.1. Le système est constitué d'une nanoparticule de rayon R et d'un émetteur quantique comme illustré sur la figure 4.4. L'Hamiltonien de l'émetteur est donné par

$$\hat{H}_{QE} = \hbar \left(\omega_0 - i \frac{\gamma_d}{2} \right) \hat{\sigma}_+ \hat{\sigma}_-, \quad (4.44)$$

avec γ_d le taux de relaxation de l'état excité $|e\rangle$ vers l'état $|g\rangle$. Le champ électrique associé aux plasmons de surface localisés est quantifié et prend la forme suivante :

$$\hat{\mathbf{E}}(\mathbf{r}, \omega) = i \sqrt{\frac{\hbar}{\pi \epsilon_0}} \frac{\omega^2}{c^2} \int d^3 r' \sqrt{\epsilon_I(\mathbf{r}', \omega)} \bar{\mathbf{G}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega) \hat{\mathbf{f}}(\mathbf{r}', \omega), \quad (4.45)$$

où $\bar{\mathbf{G}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega)$ et $\epsilon_I(\mathbf{r}', \omega)$ sont respectivement le tenseur de Green et la partie imaginaire de la permittivité diélectrique du système. Lorsque $r' < R$ alors $\epsilon(\mathbf{r}', \omega)$ correspond à la permittivité du métal $\epsilon_m(\omega)$ qui est donnée par le modèle de Drude (2.194). Pour $r' > R$, $\epsilon(\mathbf{r}', \omega)$ est égale à la permittivité ϵ_b du milieu diélectrique dans lequel la nanoparticule métallique est plongée. Les opérateurs polaritoniques $\hat{\mathbf{f}}(\mathbf{r}, \omega)$ et $\hat{\mathbf{f}}^\dagger(\mathbf{r}, \omega)$ sont le

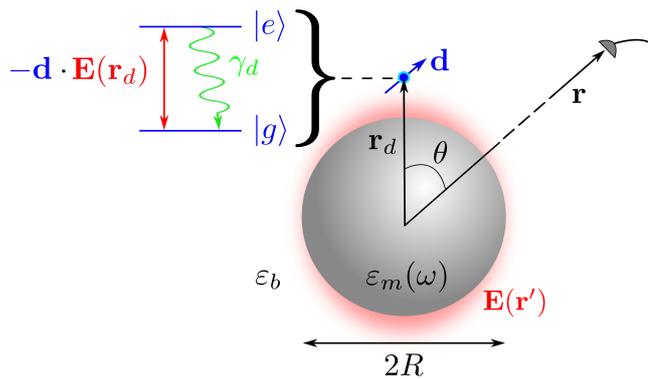


FIGURE 4.4 – Représentation du système hybride composé d'un émetteur à la position \mathbf{r}_d et d'une nanoparticule métallique de rayon R . La transition $|e\rangle \rightarrow |g\rangle$

résultat de l'hybridation des modes du champ électrique avec les modes associés à l'oscillation collective des électrons de conduction de la nanoparticule métallique. Ils permettent d'exprimer l'énergie totale du champ polaritonique ainsi

$$\hat{H}_C = \int_0^{+\infty} d\omega \int d^3 r \hat{\mathbf{f}}^\dagger(\mathbf{r}, \omega) \cdot \hat{\mathbf{f}}(\mathbf{r}, \omega). \quad (4.46)$$

L'interaction de l'émetteur avec le champ électrique est donnée par

$$\hat{H}_I = -\hat{\sigma}_+ \otimes \int_0^{+\infty} d\omega \mathbf{d} \cdot \hat{\mathbf{E}}(\mathbf{r}_d, \omega) + H.c, \quad (4.47)$$

où \mathbf{d} et \mathbf{r}_d sont respectivement le moment dipolaire et la position de l'émetteur. L'Hamiltonien du système hybride est $\hat{H} = \hat{H}_{QE} + \hat{H}_C + \hat{H}_I$ et la fonction d'onde se développe sur la base à une excitation comme suit

$$|\psi(t)\rangle = C_{e,\mathbf{0}}(t)|e, \mathbf{0}\rangle + \int d^3r \int_0^{+\infty} d\omega \mathbf{C}_g e^{-i\omega t}(\mathbf{r}, \omega, t)|g, \mathbf{1}(\mathbf{r}, \omega)\rangle, \quad (4.48)$$

où $|\mathbf{1}(\mathbf{r}, \omega)\rangle$ est l'excitation polaritonique fondamentale définie par $\hat{\mathbf{f}}^\dagger(\mathbf{r}, \omega)|\mathbf{0}\rangle = |\mathbf{1}(\mathbf{r}, \omega)\rangle$. Sur la base de ce modèle, la densité spectrale $D(\omega)$ peut être définie en s'appuyant sur la relation (4.12) :

$$D(\omega) = \frac{\gamma_d}{2\pi} \left| \int_0^{+\infty} C_{e,\mathbf{0}}(t) e^{i\omega t} dt \right|^2, \quad (4.49)$$

Le calcul détaillé dans l'annexe 4.A nous conduit à la forme analytique suivante (voir (4.135) pour un seul émetteur)

$$D(\omega) = \frac{\gamma_d}{2\pi} \left| \frac{C_{e,\mathbf{0}}(0)}{\omega_0 - \omega - i\frac{\gamma_d}{2} - \frac{\omega^2}{\hbar\epsilon_0 c^2} \mathbf{d} \cdot \bar{\mathbf{G}}_S(\mathbf{r}_d, \mathbf{r}_d, \omega) \cdot \mathbf{d}} \right|^2. \quad (4.50)$$

où la partie diffusée $\bar{\mathbf{G}}_S(\mathbf{r}_d, \mathbf{r}_d, \omega)$ est issue de la décomposition du tenseur de Green complet en une partie de l'espace libre et cette partie diffusée (2.190). Le décalage de Lamb et le taux d'émission spontanée liés à la contribution de l'espace libre sont intégrés respectivement dans les paramètres ω_0 et γ_d . Ce spectre contient toute l'information sur le comportement spectral de l'émetteur en champ proche et permet de caractériser le régime de couplage [100, 101]. Cependant, il est impossible de dissocier les contributions non-radiative et

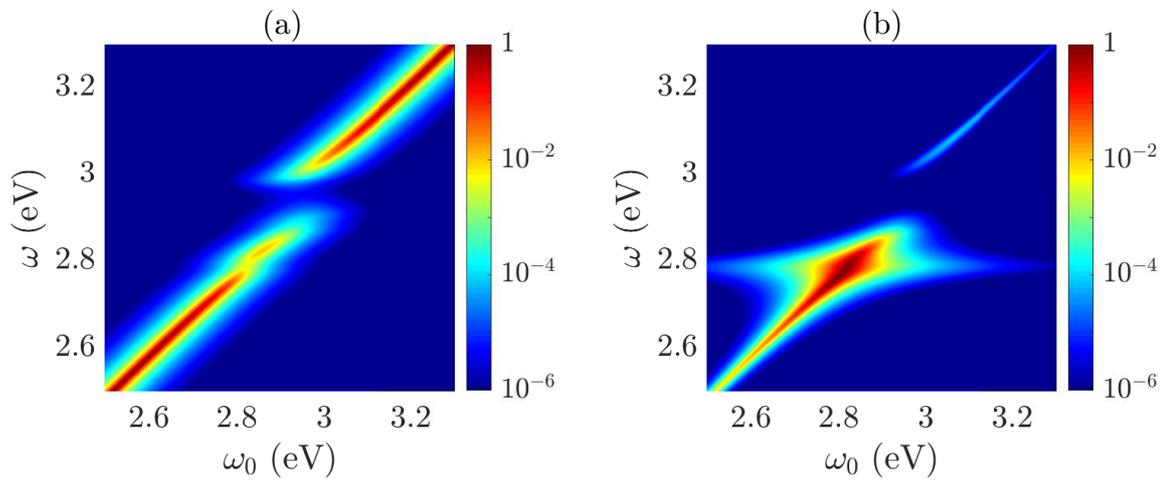


FIGURE 4.5 – Représentation de (a) la densité spectrale $D(\omega)$ et (b) du spectre d'émission radiative $S(\mathbf{r}, \omega)$ en fonction de la fréquence d'émission ω_0 d'un émetteur initialement excité et situé à 2 nm de la surface d'une sphère de rayon $R = 8$ nm. Chaque spectre est normalisé par rapport à son maximum. Pour le spectre d'émission, nous considérons un détecteur situé à 1 μm et dont le vecteur position \mathbf{r} est orthogonal à celui de l'émetteur ($\theta = \pi/2$).

radiative. Pour ce faire, nous avons recours au spectre d'émission radiative pouvant être mesuré en champ lointain. Pour un détecteur situé à la position \mathbf{r} (voir figure 4.4), ce spectre peut être défini par [102]

$$S(\mathbf{r}, \omega) = \frac{1}{2\pi} \int_0^{+\infty} dt_2 \int_0^{+\infty} dt_1 e^{-i\omega(t_2-t_1)} \langle \psi(t_2) | \hat{\mathbf{E}}^-(\mathbf{r}) \cdot \hat{\mathbf{E}}^+(\mathbf{r}) | \psi(t_1) \rangle, \quad (4.51)$$

avec

$$\hat{\mathbf{E}}^+(\mathbf{r}) = \int_0^{+\infty} d\omega \hat{\mathbf{E}}(\mathbf{r}, \omega), \quad \hat{\mathbf{E}}^-(\mathbf{r}) = [\hat{\mathbf{E}}^+(\mathbf{r})]^\dagger. \quad (4.52)$$

Le calcul de l'annexe 4.A nous amène à la forme suivante

$$S(\mathbf{r}, \omega) = \frac{1}{\gamma_d} \left| \frac{\omega^2}{\varepsilon_0 c^2} \bar{\bar{\mathbf{G}}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_d, \omega) \mathbf{d} \right|^2 D(\omega), \quad (4.53)$$

qui révèle que le signal détecté est la densité spectrale $D(\omega)$ pondérée par un terme de propagation

$$K(\mathbf{r}, \omega) = \left| \frac{\omega^2}{\varepsilon_0 c^2} \bar{\bar{\mathbf{G}}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_d, \omega) \mathbf{d} \right|^2, \quad (4.54)$$

de la position \mathbf{r}_d de l'émetteur jusqu'à la position \mathbf{r} du détecteur. Les réponses spectrales en champ proche et en champ lointain sont représentées respectivement sur les figures 4.5(a) et 4.5(b) pour un émetteur initialement excité et situé à 2 nm de la surface d'une sphère d'argent de rayon 8 nm. Les pertes de l'état excité sont $\gamma_d = 15$ meV. Les paramètres du modèle de Drude utilisés sont $\hbar\omega_p = 7.9$ eV, $\varepsilon_\infty = 6$ et $\hbar\gamma_e = 51$ meV [103]. La permittivité du milieu diélectrique environnant la sphère est $\varepsilon_b = 1$ et le moment dipolaire de l'émetteur est orienté radialement et prend la valeur $|\mathbf{d}| = 24$ Debye. La densité spectrale en (a) fait apparaître une levée de

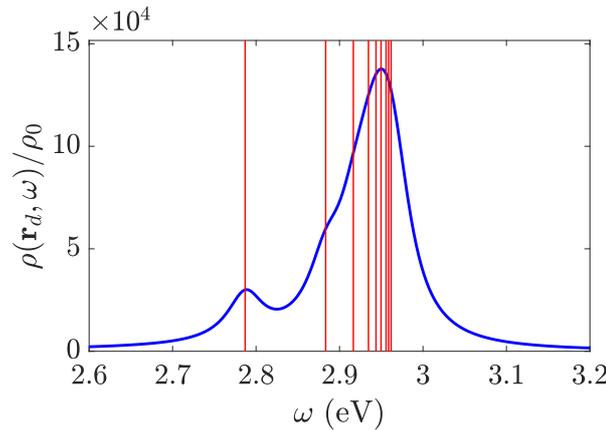


FIGURE 4.6 – Représentation de la densité d'états locale normalisée par rapport à celle de l'espace libre pour un émetteur situé à 2 nm de la surface d'une sphère d'argent de rayon $R = 8$ nm. Les lignes rouges indiquent les fréquences de résonances des 9 premiers modes plasmoniques issus de la décomposition modale.

dégénérescence importante autour de la fréquence de transition $\omega_0 \approx 2.936$ eV. D'après la densité d'état locale normalisée définie par

$$\frac{\rho(\mathbf{r}_d, \omega)}{\rho_0} = \frac{6\pi c}{\omega} \mathbf{d} \cdot \Im \left[\bar{\bar{\mathbf{G}}}(\mathbf{r}_d, \mathbf{r}_d, \omega) \right] \cdot \mathbf{d}, \quad (4.55)$$

et représentée sur la figure 4.6, il existe une forte accumulation des modes plasmoniques d'ordre supérieur dans un domaine de fréquence allant de 2.93 à 2.96 eV. Ceci nous indique que ce sont principalement les modes plasmoniques d'ordre supérieur qui se couplent fortement avec l'émetteur et qui donne lieu à cette levée de dégénérescence. Pour une fréquence d'émission $\omega_0 \approx 2.82$ eV, nous voyons un régime intermédiaire pour lequel la levée de dégénérescence n'est pas suffisamment importante pour définir un couplage fort et qui résulte principalement du couplage avec le mode dipolaire. Le spectre d'émission $S(\mathbf{r}, \omega)$ visible sur la figure 4.5(b) est calculé pour un détecteur situé à $1 \mu\text{m}$ de la sphère. Celui-ci révèle l'émission dipolaire de la particule à $\omega_0 \approx 2.8$ eV. Cependant, la levée de dégénérescence que nous avons pu clairement identifier sur le spectre $D(\omega)$ est ici très atténuée. Nous pouvons interpréter ce résultat par le fait que les modes plasmoniques d'ordre supérieur sont peu radiatifs pour une particule suffisamment petite.

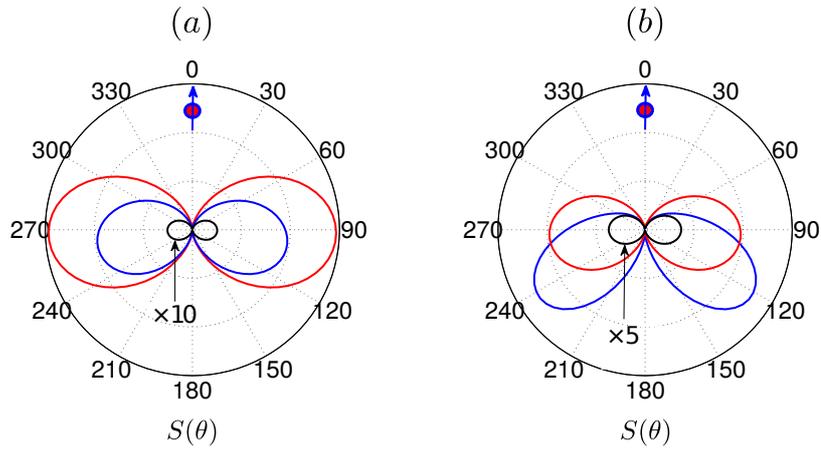


FIGURE 4.7 – Représentation du spectre d’émission radiative en fonction de la position angulaire θ du détecteur (voir figure 4.4) pour un émetteur situé à 2 nm d’une sphère de rayon $R = 8$ nm en (a) et $R = 20$ nm en (b). Les trois courbes sont calculées à la fréquence des trois différents pics constituant le spectre d’émission radiative pour une fréquence de transition fixée à la résonance des modes plasmoniques d’ordre supérieur ($\omega_0 = 2.936$ eV en (a) et $\omega_0 = 2.964$ eV en (b)). Courbes rouges : $\omega = 2.79$ eV (a) ou $\omega = 2.76$ eV (b). Courbes bleues : $\omega = 2.86$ eV (a) ou $\omega = 2.89$ eV (b). Courbes noires : $\omega = 3$ eV (a) ou $\omega = 3.02$ eV (b).

Diagramme d’émission Les amplitudes des trois pics associés à la réponse dipolaire et à la levée de dégénérescence sont tracées en fonction de la position angulaire du détecteur θ sur la figure 4.7. Nous voyons apparaître la distribution angulaire caractéristique de l’émission dipolaire ($S(\theta) \propto \sin^2(\theta)$). Cependant, une diffusion vers l’avant se produit pour une particule plus grosse à la fréquence $\omega = 2.89$ eV (voir courbe bleue de la figure 4.7(b)). Ce phénomène témoigne du rôle du mode plasmonique quadrupolaire dans le processus de couplage [104].

4.2.2 Représentation des états habillés du système

Le système hybride émetteur-nanoparticule peut être étudié sur la base du modèle effectif discret établi dans la sous-section 2.3.1. Les plasmons de surface localisés se décomposent selon un ensemble de pseudo-modes plasmoniques caractérisés par les fréquences de résonance ω_n et les pertes γ_n et se couplent à l’émetteur via les constantes de couplage $g_n(\mathbf{r}_d)$. L’Hamiltonien total est donné par (2.129) et prend la forme matricielle suivante

$$\hat{H}_{eff} = \hbar \begin{pmatrix} \omega_0 - i\frac{\gamma_0}{2} & g_1(\mathbf{r}_d) & g_2(\mathbf{r}_d) & \cdots & g_N(\mathbf{r}_d) \\ g_1(\mathbf{r}_d) & \omega_1 - i\frac{\gamma_1}{2} & 0 & \cdots & 0 \\ g_2(\mathbf{r}_d) & 0 & \omega_2 - i\frac{\gamma_2}{2} & \cdots & \vdots \\ \vdots & \vdots & \cdots & \ddots & 0 \\ g_N(\mathbf{r}_d) & 0 & \cdots & 0 & \omega_N - i\frac{\gamma_N}{2} \end{pmatrix}, \quad (4.56)$$

où nous prenons en compte un nombre fini N de modes plasmoniques. La fonction d’onde qui se rattache à cet Hamiltonien s’écrit ainsi

$$|\psi(t)\rangle = C_{e,0}(t)|e, \mathbf{0}\rangle + \sum_{n=1}^N C_{g,1}^n(t)|g, 1_n\rangle. \quad (4.57)$$

La diagonalisation de l’Hamiltonien (4.56) révèle un nombre $N + 1$ d’états propres Π_m dont les valeurs propres s’écrivent

$$\lambda_m = \Omega_m - i\frac{\Gamma_m}{2}, \quad (m = 1, 2, \dots, N + 1), \quad (4.58)$$

et correspondent aux fréquences angulaires complexes des états hybrides du système. L’Hamiltonien effectif n’étant pas hermitien du fait de la nature dissipative des pseudo-modes plasmoniques, nous devons distinguer

les états propres droits $|\Pi_m^D\rangle$ et les états propres gauches $|\Pi_m^G\rangle$ définis par [99] :

$$\hat{H}_{eff}^\dagger |\Pi_m^D\rangle = \lambda_m |\Pi_m^D\rangle, \quad (4.59)$$

$$\hat{H}_{eff}^\dagger |\Pi_m^G\rangle = \lambda_m^* |\Pi_m^G\rangle, \quad (4.60)$$

$$\langle \Pi_m^G | \Pi_{m'}^D \rangle = \delta_{mm'}, \quad (4.61)$$

où λ_m^* est la valeur propre conjuguée. Pour un Hamiltonien prenant la forme (4.56), les états hybrides s'expriment en fonction des états originels ainsi :

$$|\Pi_m^D\rangle = m_0 |e, \mathbf{0}\rangle + \sum_{n=1}^N m_n |g, 1_n\rangle, \quad (4.62)$$

$$|\Pi_m^G\rangle = m_0^* |e, \mathbf{0}\rangle + \sum_{n=1}^N m_n^* |g, 1_n\rangle, \quad (4.63)$$

et la fonction d'onde est étendue sur la nouvelle base comme suit

$$|\psi(t)\rangle = \sum_{m=1}^{N+1} \eta_m e^{-i\lambda_m t} |\Pi_m^D\rangle, \quad (4.64)$$

avec $\eta_m = \langle \Pi_m^G | \psi(0) \rangle$. Pour un émetteur initialement excité on a $\eta_m = m_0$ et la densité spectrale est alors donnée par une somme de fonctions lorentziennes complexes :

$$D(\omega) = \frac{\gamma_d}{2\pi} \left| \sum_{m=1}^{N+1} \frac{m_0^2}{\omega - \Omega_m + i\frac{\Gamma_m}{2}} \right|^2, \quad (4.65)$$

où la contribution spectrale de chaque état hybride est associée à l'une de ces fonctions et est pondérée par

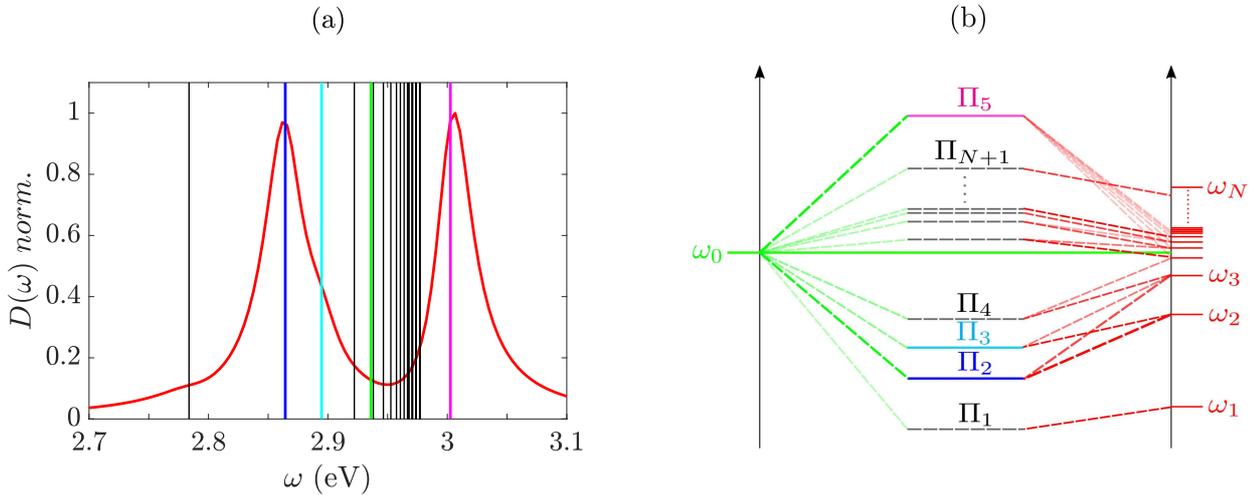


FIGURE 4.8 – (a) Représentation graphique de la densité spectrale $D(\omega)$ pour une fréquence d'émission $\omega_0 = 2.936$ eV. Les conditions utilisées pour le calcul du spectre (rayon, distance, moment dipolaire, paramètres du modèle de Drude) sont identiques à celles considérées dans la sous-section 4.2.1. Les lignes bleue, magenta et cyan indiquent respectivement les fréquences Ω_2 , Ω_5 et Ω_3 des états hybrides contribuant le plus dans la levée de dégénérescence. Les lignes noires indiquent les fréquences des autres états hybrides. (b) Schéma d'hybridation du mode d'émission en vert et des modes plasmoniques en rouge menant à la formation des états habillés.

le terme m_0^2 indiquant la contribution de l'émetteur dans l'état habillé. Le spectre $D(\omega)$ est tracé en rouge sur la figure 4.8(a) pour une fréquence d'émission de l'émetteur $\omega_0 = 2.936$ eV indiquée par la ligne verte. La figure 4.8(b) illustre la formation des états habillés Π_m résultant de l'hybridation du mode d'émission de

l'émetteur en vert et des modes plasmoniques en rouge. L'allure du spectre $D(\omega)$ indique que le couplage fort est atteint. Les deux pics de la levée de dégénérescence correspondent aux deux états hybrides Π_2 et Π_5 dont les contributions de l'émetteur m_0 sont les plus importantes. Les fréquences associées à ces deux états Ω_2 et Ω_5 sont représentées respectivement par les lignes bleu et magenta. La valeur de la levée de dégénérescence $\Delta\omega_{eff} = \Omega_5 - \Omega_2$ calculée à partir des valeurs propres de l'Hamiltonien vaut 139 meV et est très proche de la valeur de la levée de dégénérescence $\Delta\omega = 142$ meV révélée par la densité spectrale. L'état hybride Π_3 , dont la fréquence Ω_3 est représentée par la ligne bleu cyan, est responsable de l'épaule visible sur le pic de gauche. L'étude des composantes m_n de la relation (4.107) permet de déduire que l'état hybride Π_2 est

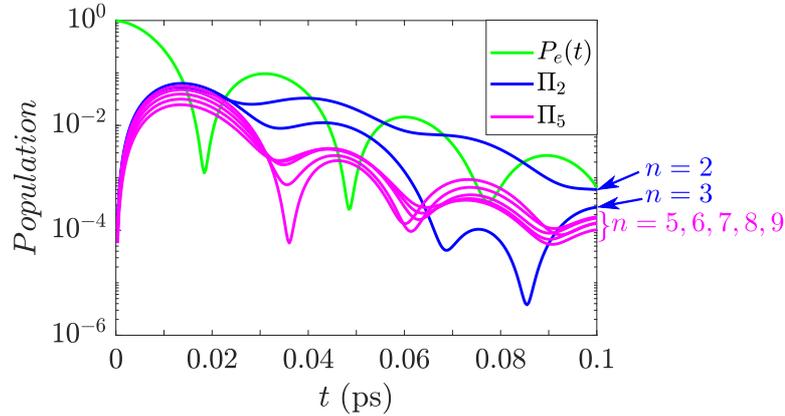


FIGURE 4.9 – Évolution temporelle du système associée à la densité spectrale de la figure 4.8(a) et calculée sur la base de l'Hamiltonien effectif. La population de l'état excité de l'émetteur est représentée en vert. Les populations associées aux modes plasmoniques contribuant le plus dans la décomposition (4.107) des modes hybrides Π_2 ($n = 2, 3$) et Π_5 ($n = 5, 6, 7, 8, 9$) sont respectivement représentées en bleu et magenta.

issu de l'interaction de l'émetteur avec les modes plasmoniques quadripolaire ($n = 2$) et hexapolaire ($n = 3$) principalement. La dynamique des populations de ces deux modes plasmoniques est représentée en bleu sur la figure 4.9. Pour le mode hybride Π_5 , c'est un ensemble de modes plasmoniques allant de $n = 5$ à $n = 9$ qui contribuent le plus et qui sont associés aux populations visibles en magenta sur la figure 4.9. La dynamique de la population de l'état excité de l'émetteur, représentée par la courbe vert, présente des oscillations très amorties de période $T \approx 2\pi/\Delta\omega_{eff}$.

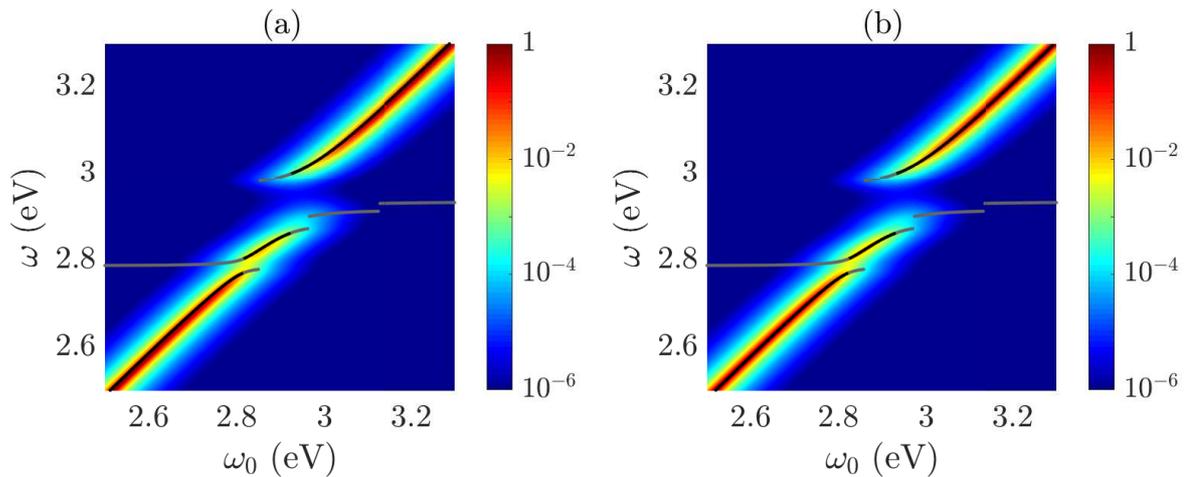


FIGURE 4.10 – (a) et (b) Représentation de la densité spectrale de la figure 4.5(a). Les fréquences Ω_m calculées à partir de la diagonalisation de l'Hamiltonien effectif (4.56) sont représentées sur la figure (a) par des points noirs pour l'état hybride ayant une contribution m_0^2 la plus importante. Les fréquences angulaires du second plus important mode hybride sont représentées par les points gris. Sur la figure (b), ce sont les fréquences angulaires Ω_m^c issues de la diagonalisation de l'Hamiltonien corrigé (4.69) qui sont représentées.

Pour chaque fréquence ω_0 nous identifions les fréquences angulaires Ω_m des deux modes hybrides ayant les plus grandes contributions m_0^2 lors de la diagonalisation de l'Hamiltonien effectif (4.56). La fréquence du mode hybride le plus important est représentée par les points noirs sur la figure 4.10(a) et celle du second mode hybride majoritaire est représentée par les points gris. Nous voyons qu'elles sont en accord avec la densité spectrale repris de la figure 4.5 (a). Cependant, nous constatons un léger décalage en fréquence qui peut être compensé en corrigeant l'Hamiltonien effectif (4.56).

Correction de l'Hamiltonien effectif En régime de couplage faible, le décalage de Lamb provoqué par la

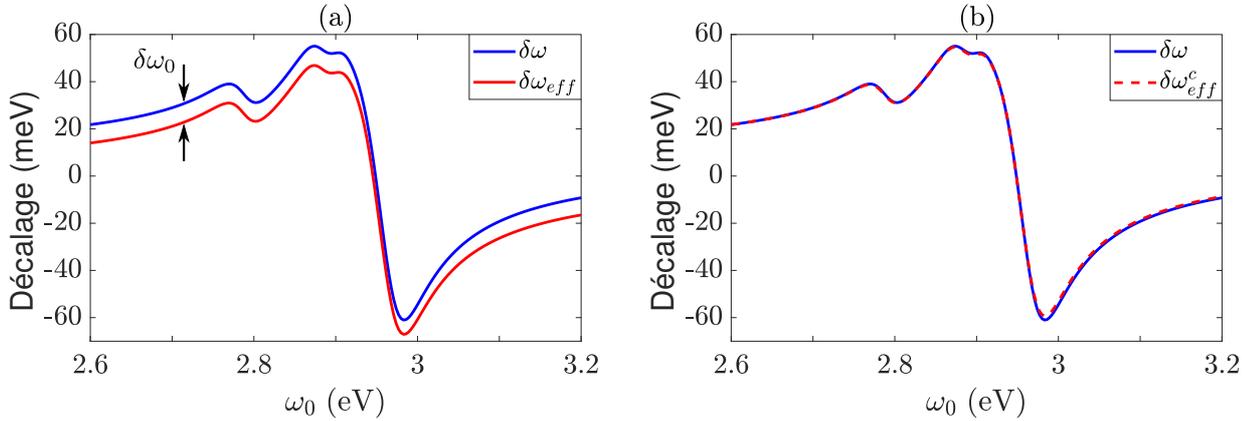


FIGURE 4.11 – (a) Le décalage de Lamb exact (4.66) et effectif (4.67) sont représentés respectivement par les courbes bleu et rouge. Le terme correctif $\delta\omega_0$ indiqué par les flèches noires vaut 8 meV. (b) Représentation du décalage exact en bleu et du décalage effectif corrigé (4.68) en tirets rouges.

présence de la sphère métallique est donné par

$$\delta\omega = \frac{\omega_0^2}{\hbar\varepsilon_0 c^2} \mathbf{d} \cdot \Re \left[\bar{\mathbf{G}}_S(\mathbf{r}_d, \mathbf{r}_d, \omega_0) \right] \cdot \mathbf{d}, \quad (4.66)$$

et est représenté par la courbe bleue sur la figure 4.11(a). Le décalage de Lamb, obtenu par élimination adiabatique des modes plasmoniques de l'Hamiltonien (4.56), est quant à lui donné par

$$\delta\omega_{eff} = \sum_{n=1}^N \frac{(\omega_n - \omega_0)}{(\omega_n - \omega_0)^2 + \left(\frac{\gamma_n}{2}\right)^2} g_n(\mathbf{r}_d)^2, \quad (4.67)$$

et est représenté par la courbe rouge sur la figure 4.11(a). Nous voyons que le décalage effectif $\delta\omega_{eff}$ est inférieur au décalage exact $\delta\omega$ quelle que soit la fréquence ω_0 . Pour corriger cela, nous définissons un nouveau décalage $\delta\omega_{eff}^c$ dans lequel nous introduisons un terme constant $\delta\omega_0$:

$$\delta\omega_{eff}^c = \delta\omega_0 + \delta\omega_{eff}. \quad (4.68)$$

La figure 4.11(b) montre que ce nouveau décalage effectif corrigé, représenté par la courbe en tirets rouges, est en accord avec le décalage exact (4.66), associé à la courbe bleue, pour $\delta\omega_0 = 8$ meV. À partir de la diagonalisation de l'Hamiltonien effectif corrigé

$$\hat{H}_{eff}^c = \hbar \begin{pmatrix} \omega_0 - \delta\omega_0 - i\frac{\gamma_d}{2} & g_1(\mathbf{r}_d) & g_2(\mathbf{r}_d) & \cdots & g_N(\mathbf{r}_d) \\ g_1(\mathbf{r}_d) & \omega_1 - i\frac{\gamma_1}{2} & 0 & \cdots & 0 \\ g_2(\mathbf{r}_d) & 0 & \omega_2 - i\frac{\gamma_2}{2} & \cdots & \vdots \\ \vdots & \vdots & \cdots & \ddots & 0 \\ g_N(\mathbf{r}_d) & 0 & \cdots & 0 & \omega_N - i\frac{\gamma_N}{2} \end{pmatrix}, \quad (4.69)$$

nous déduisons les fréquences angulaires Ω_m^c des deux modes hybrides majoritaires qui sont représentées par les points noirs sur la figure 4.10(b). On obtient un excellent accord entre le calcul exact de la densité spectrale et l'Hamiltonien (4.69).

Nous pouvons expliquer cette correction par le détail de la construction du modèle effectif au chapitre 2. En effet cette construction comprend une étape de discrétisation qui repose uniquement sur la forme Lorentzienne de la partie imaginaire du tenseur de Green (voir les équations (2.52) et (2.105)). Cependant, celle-ci est reliée à la partie réelle par une relation de Kramers-Kronig. Lors de la discrétisation, l'extension du domaine d'intégration de $[0, +\infty[$ à $]-\infty, +\infty[$, intervenant dans le calcul de l'expression (2.110), entraîne une erreur sur le décalage de Lamb effectif que l'on a estimé avec le terme $\delta\omega_0$. Néanmoins, cette erreur reste assez faible pour que le modèle effectif permette de faire une analyse complète et juste du comportement spectral de l'émetteur en champ proche. De plus, il permet de discuter le rôle des modes plasmons dans le processus de couplage et d'étudier la dynamique de leur population.

4.2.3 Contribution modale en champ lointain

Le modèle effectif permet de faire une description locale du système émetteur-nanoparticule étant donné qu'il repose entièrement sur la décomposition modale de la densité d'état locale. Les opérateurs associés aux modes plasmoniques (2.55) ne sont qu'une projection du moment dipolaire de l'émetteur sur le champ électromagnétique à la position de l'émetteur. Il est donc impossible d'appliquer la définition du spectre d'émission (4.51) en ne considérant que l'Hamiltonien effectif. Cependant, la définition (4.14) établie dans le cadre de l'électrodynamique quantique en cavité peut être mis à profit ici. En considérant que seul le mode dipolaire de la nanoparticule contribue à l'émission radiative en champ lointain, nous pouvons définir le spectre d'émission effectif comme étant la transformée de Fourier de l'amplitude de probabilité $C_{g,1}^1(t)$ associée à l'excitation de ce mode :

$$S_{eff}(\omega) = \frac{\gamma_1^r}{2\pi} \left| \int_0^{+\infty} C_{g,1}^1(t) e^{i\omega t} dt \right|^2. \quad (4.70)$$

où γ_1^r correspond aux pertes radiatives du mode dipolaire. Les spectres $S_{eff}(\omega)$ et $S(\mathbf{r}, \omega)$ n'ont pas les mêmes dimensions mais le spectre effectif permet de discuter le comportement en champ lointain en lien avec la population du mode plasmonique dipolaire. De plus, le spectre effectif est associé au rayonnement dans tout l'espace alors que le spectre $S(\mathbf{r}, \omega)$ est mesuré dans une direction donnée par le vecteur \mathbf{r} . La figure 4.12 présente les spectres d'émission normalisés pour différentes fréquences d'émission ω_0 . Le spectre exact en bleu est calculé à partir de la formule exacte (4.53) alors que la courbe rouge est associée au spectre d'émission effectif découlant de la relation (4.70). D'une manière générale, le spectre effectif est en accord avec le spectre

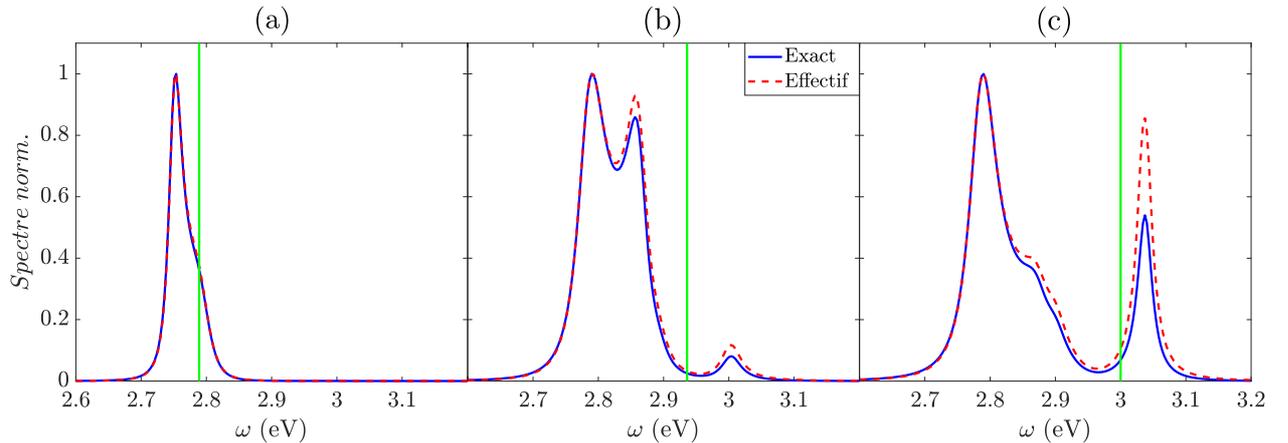


FIGURE 4.12 – Spectre d'émission exact en bleu et effectif en tirets rouges pour trois fréquences d'émission indiquées par les lignes vertes. En (a) $\omega_0 = 2.789$ eV, (b) $\omega_0 = 2.936$ eV et (c) $\omega_0 = 3$ eV. Chacun des spectres est normalisé par rapport à sa valeur maximale.

d'émission radiative. Néanmoins, nous voyons sur les figures (b) et (c) que les valeurs du spectre effectif sont plus importantes pour des fréquences ω élevées. En appliquant la transformée de Fourier sur l'équation différentielle

$$\dot{C}_{g,1}^1(t) = -ig_1(\mathbf{r}_d)C_{e,0}(t) - \left(i\omega_1 + \frac{\gamma_1}{2}\right) C_{g,1}^1(t), \quad (4.71)$$

régissant la dynamique de $C_{g,1}^1(t)$ et en admettant que l'état $|g, 1_1\rangle$ n'est pas peuplé initialement et finalement ($C_{g,1}^1(0) = 0$ et $\lim_{t \rightarrow +\infty} C_{g,1}^1(t) = 0$) alors nous trouvons que

$$\int_0^{+\infty} C_{g,1}^1(t) e^{i\omega t} dt = \frac{-g_1(\mathbf{r}_d)}{\omega_1 - \omega + i\frac{\gamma_1}{2}} \int_0^{+\infty} C_{e,0}(t) e^{i\omega t} dt. \quad (4.72)$$

Ceci nous amène à la forme analytique de $S_{eff}(\omega)$ suivante

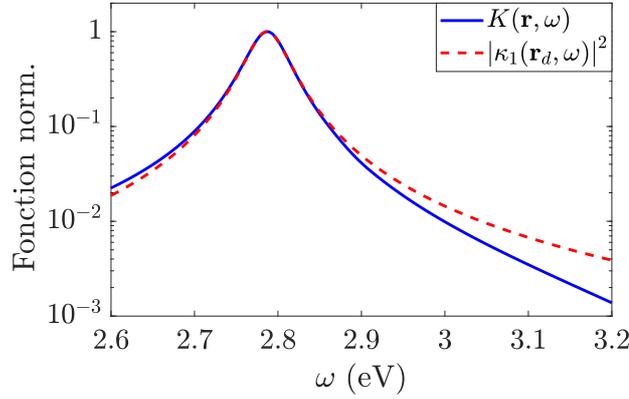


FIGURE 4.13 – Représentation graphique des fonctions $|\kappa_1(\mathbf{r}_d, \omega)|^2$ en tirets rouges et $K(\mathbf{r}, \omega)$ en bleu. Chaque fonction est normalisée par rapport à son maximum.

$$S_{eff}(\omega) = \frac{\gamma_1^r}{\gamma_1} |\kappa_1(\mathbf{r}_d, \omega)|^2 \frac{2\pi}{\gamma_d} D(\omega), \quad (4.73)$$

où la densité spectrale est multipliée par le profil de résonance associé au mode dipolaire définis par (2.105) :

$$\kappa_1(\mathbf{r}_d, \omega) = \sqrt{\frac{\gamma_1}{2\pi}} \frac{ig_1(\mathbf{r}_d)}{\omega - \omega_1 + i\frac{\gamma_1}{2}}. \quad (4.74)$$

Cette nouvelle expression de $S_{eff}(\omega)$ prend une forme très proche de la formule (4.53). Seule la fonction pondérant le spectre $D(\omega)$ est différente. L'allure du profil lorentzien $|\kappa_1(\mathbf{r}_d, \omega)|^2$, présentée sur la figure 4.13, reste proche de celle du terme de propagation $K(\mathbf{r}, \omega)$ défini par (4.54) pour des fréquences ω proches de la résonance dipolaire. Cependant, nous remarquons que la fonction $|\kappa_1(\mathbf{r}_d, \omega)|^2$ décroît moins vite que $K(\mathbf{r}, \omega)$ lorsque $\omega > \omega_1$. Ceci explique les écarts visibles sur les spectres (b) et (c) de la figure 4.12.

4.3 Couplage collectif fort

Nous avons pu voir dans le chapitre 3 qu'un processus collectif de relaxation pouvait naître de l'interaction d'un ensemble d'émetteurs avec une nanoparticule métallique et provoquer un pic d'émission caractéristique de la superradiance. Il sera intéressant de voir dans cette section comment ce processus collectif peut se manifester en régime de couplage fort. Nous considérons l'Hamiltonien suivant

$$\hat{H} = \hat{H}_{QE} + \hat{H}_R + \hat{H}_I, \quad (4.75)$$

$$\hat{H}_{QE} = \sum_{l=1}^{N_e} \hbar \left(\omega_0 - i\frac{\gamma_d}{2} \right) \hat{\sigma}_+^{(l)} \hat{\sigma}_-^{(l)}, \quad (4.76)$$

$$\hat{H}_C = \int_0^{+\infty} d\omega \int d^3r \hbar \omega \hat{\mathbf{f}}^\dagger(\mathbf{r}, \omega) \cdot \hat{\mathbf{f}}(\mathbf{r}, \omega), \quad (4.77)$$

$$\hat{H}_I = - \sum_{l=1}^{N_e} \left[\hat{\sigma}_+^{(l)} \otimes \int_0^{+\infty} d\omega \mathbf{d}^{(l)} \cdot \hat{\mathbf{E}}(\mathbf{r}_l, \omega) + H.c \right], \quad (4.78)$$

décrivant un système constitué d'un nombre N_e d'émetteurs identiques couplés à une nanoparticule. La fonction d'onde se décompose sur la base à une excitation comme suit

$$|\psi(t)\rangle = \sum_{l=1}^{N_e} C_{e,\mathbf{0}}^{(l)}(t) |e^{(l)}, \mathbf{0}\rangle + \int d^3r \int_0^{+\infty} d\omega e^{-i\omega t} \mathbf{C}_g(\mathbf{r}, \omega, t) |g, \mathbf{1}(\mathbf{r}, \omega)\rangle, \quad (4.79)$$

où $|e^{(l)}, \mathbf{0}\rangle$ est le vecteur d'état où seul le $i^{\text{ème}}$ émetteur est excité avec aucune excitation polaritonique. Pour $N_e = 4$, nous avons par exemple $|e^{(2)}, \mathbf{0}\rangle = |g, e, g, g, \mathbf{0}\rangle$. Pour l'ensemble de l'étude faisant l'objet de cette

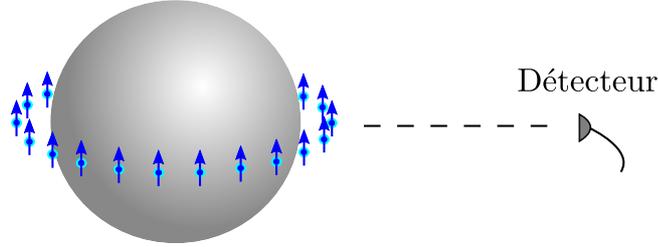


FIGURE 4.14 – Configuration spatiale des émetteurs considérée. Ceux-ci se répartissent de manière homogène sur un cercle centré sur la nanoparticule de rayon $R = 8\text{ nm}$ et le moment dipolaire de chaque émetteur est perpendiculaire au plan de l'équateur et vaut 24 Debye. La distance h entre les émetteurs et la surface de la sphère est de 2 nm. Le détecteur est placé dans le même plan à $1\ \mu\text{m}$.

section, nous considérons la superposition cohérente

$$|B, \mathbf{0}\rangle = \frac{1}{\sqrt{N_e}} \left(\sum_{l=1}^{N_e} |e^{(l)}, \mathbf{0}\rangle \right), \quad (4.80)$$

comme condition initiale ($|\psi(0)\rangle = |B, \mathbf{0}\rangle$). Cet état correspond à l'état de Dicke $|J, -J + 1\rangle$ dans la cascade radiative de la superradiance idéale (voir chapitre 3). À noter qu'il est aussi possible d'étudier la réponse spectrale issue d'un pompage incohérent [105]. Pour caractériser le couplage collectif, nous définissons la densité spectrale comme suit

$$D(\omega) = \frac{\gamma_d}{2\pi} \left| \int_0^{+\infty} C_{B,\mathbf{0}}(t) e^{i\omega t} dt \right|^2, \quad (4.81)$$

où $C_{B,\mathbf{0}}(t)$ est l'amplitude de probabilité associée à l'état $|B, \mathbf{0}\rangle$. D'après (4.80), on trouve que

$$D(\omega) = \frac{\gamma_d}{2\pi N_e} \left| \sum_{l=1}^{N_e} \int_0^{+\infty} C_{e,\mathbf{0}}^{(l)}(t) e^{i\omega t} dt \right|^2. \quad (4.82)$$

L'expression analytique utilisée pour le calcul de cette densité est déterminée dans l'annexe 4.A (voir équation (4.138)). Le spectre d'émission radiative du système mesuré à la position \mathbf{r} du détecteur est quant à lui déterminé à partir de la définition (4.51). Il peut s'écrire sous la forme suivante (voir équation (4.149)) :

$$S(\mathbf{r}, \omega) = \frac{1}{2\pi} \left| \sum_{l=1}^{N_e} \frac{\omega^2}{\varepsilon_0 c^2} \bar{\mathbf{G}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_l, \omega) \mathbf{d}^{(l)} \int_0^{+\infty} C_{e,\mathbf{0}}^{(l)}(t) e^{i\omega t} dt \right|^2. \quad (4.83)$$

La figure 4.15 présente les densités spectrales obtenues pour une configuration spatiale des émetteurs illustrée sur la figure 4.14. Pour un unique émetteur en 4.15(a), une levée de dégénérescence $\Delta\omega = 82\text{ meV}$ a lieu à la fréquence de résonance des modes d'ordre élevé $\omega_0 = 2.93\text{ eV}$. Lorsque plusieurs émetteurs interviennent, un processus collectif se met en place et provoque une augmentation du couplage collectif associé à la levée de dégénérescence. Pour $N_e = 15$, $N_e = 30$ et $N_e = 50$ le couplage collectif aux modes d'ordre élevé donne lieu aux levées de dégénérescence $\Delta\omega = 107\text{ meV}$, $\Delta\omega = 141\text{ meV}$ et $\Delta\omega = 166\text{ meV}$. Nous voyons de plus sur la figure 4.15(b) qu'un anticroisement apparaît à la fréquence $\omega_0 = 2.82\text{ eV}$. Lorsque N_e devient suffisamment

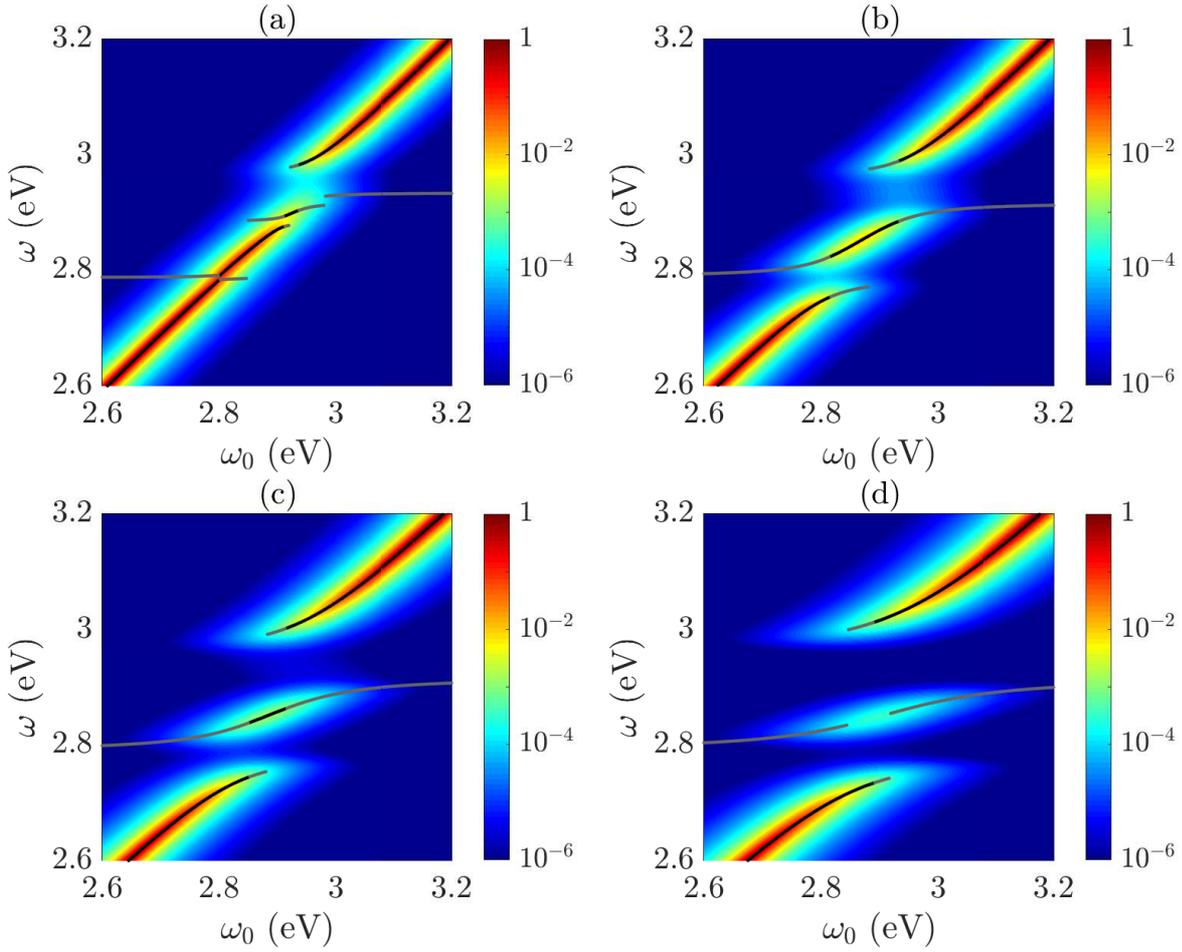


FIGURE 4.15 – Densité spectrale normalisés pour $N_e = 1$ en (a), $N_e = 15$ en (b), $N_e = 30$ en (c) et $N_e = 50$ en (d). Les émetteurs sont situés à 2 nm de la sphère et se répartissent selon la configuration spatiale visible sur la figure 4.14. Les fréquences angulaires Ω_m^c du mode hybride contribuant le plus en champ proche sont représentées par les points noirs. Les fréquences angulaires du second plus important mode hybride sont représentées en gris.

important, les émetteurs se couplent fortement au mode dipolaire de la nanoparticule. Le couplage collectif associé est caractérisé par $\Delta\omega = 71$ meV pour $N_e = 15$, $\Delta\omega = 94$ meV pour $N_e = 30$ et $\Delta\omega = 112$ meV pour $N_e = 50$. Nous remarquons que pour $N_e = 50$ les deux levées de dégénérescence ne sont plus indépendantes et se combine pour former une levée bien plus importante de 310 meV qui est indiquée par la rupture de la courbe noire à $\omega_0 = 2.89$ eV.

Le système peut aussi être étudié à l'aide du modèle effectif. Nous considérons la forme corrigée de l'Hamiltonien effectif (2.134) suivante :

$$\begin{aligned} \hat{H}_{eff}^c = & \sum_{l=1}^{N_e} \hbar \left(\omega_0 - i\frac{\gamma_d}{2} \right) \hat{\sigma}_+^{(l)} \hat{\sigma}_-^{(l)} - \sum_{l=1}^{N_e} \sum_{l'=1}^{N_e} \hbar \delta\omega_0^{l,l'} \hat{\sigma}_+^{(l)} \hat{\sigma}_-^{(l')} + \sum_{n=1}^N \sum_{j=1}^{N_{ind}} \hbar \left(\omega_n - i\frac{\gamma_n}{2} \right) \hat{b}_n^{(j)\dagger} \hat{b}_n^{(j)} \\ & + \hbar \sum_{l=1}^{N_e} \sum_{n=1}^N \sum_{j=1}^{N_{ind}} \left(g_n^{(lj)} \hat{\sigma}_+^{(l)} \hat{b}_n^{(j)} + \left(g_n^{(lj)} \right)^* \hat{b}_n^{(j)\dagger} \hat{\sigma}_-^{(l)} \right), \end{aligned} \quad (4.84)$$

où le terme correctif $\delta\omega_0^{l,l'}$ traduit un couplage entre les émetteurs l et l' (ou un décalage de Lamb pour $l = l'$) qui n'est pas pris en compte dans le modèle effectif originel. Il est défini par

$$\delta\omega_0^{l,l'} = \delta\omega^{l,l'} - \delta\omega_{eff}^{l,l'}, \quad (4.85)$$

avec

$$\delta\omega^{l,l'} = \frac{\omega_0^2}{\hbar\varepsilon_0 c^2} \mathbf{d}^{(l)} \cdot \Re \left[\bar{\mathbf{G}}_S(\mathbf{r}_l, \mathbf{r}_{l'}, \omega_0) \right] \cdot \mathbf{d}^{(l')}, \quad (4.86)$$

$$\delta\omega_{eff}^{l,l'} = \sum_{n=1}^N \frac{(\omega_n - \omega_0)}{(\omega_n - \omega_0)^2 + \left(\frac{\gamma_n}{2}\right)^2} g_n(\mathbf{r}_l) g_n(\mathbf{r}_{l'}) \mu_n^{l,l'}(\omega_n). \quad (4.87)$$

Pour la configuration spatiale en anneau présentée sur la figure 4.14, le décalage de Lamb de chaque émetteur l est le même $\delta\omega_0^{l,l'} = \delta\omega_0 = 3$ meV. Les couplages $\delta\omega_0^{l,l'}$ tendent très vite vers 0 lorsque la distance entre les émetteurs l et l' grandit. La configuration en anneau des émetteurs présentera des réponses spectrales décalées d'une valeur minimale $\delta\omega_0$ si les émetteurs sont suffisamment espacés. La fonction d'onde associée à l'Hamiltonien (4.84) se décompose sur la base à une excitation de dimension $dim = N_e + N \times N_{ind}$ ainsi

$$|\psi(t)\rangle = \sum_{l=1}^{N_e} C_{e,0}^{(l)}(t) |e^{(l)}, \mathbf{0}\rangle + \sum_{n=1}^N \sum_{j=1}^{N_{ind}} C_{g,1}^{n,(j)}(t) |g, 1_n^{(j)}\rangle, \quad (4.88)$$

où $|1_n^{(j)}\rangle$ fait référence à un état de Löwdin j du mode plasmonique n défini par $|1_n^{(j)}\rangle = \hat{b}_n^{(j)\dagger} |\mathbf{0}\rangle$ (voir la sous-section 2.2.3 pour l'orthonormalisation de Löwdin). Cette fonction d'onde peut aussi être étendue sur la base formée par les états propres $|\Pi_m^D\rangle$ et $|\Pi_m^G\rangle$ du système :

$$|\psi(t)\rangle = \sum_{m=1}^{dim} \eta_m e^{-i\lambda_m^c t} |\Pi_m^D\rangle, \quad (4.89)$$

où $\eta_m = \langle \Pi_m^G | \psi(0) \rangle = \langle \Pi_m^G | B, \mathbf{0} \rangle$. Chacun de ces états est défini par la valeur propre $\lambda_m^c = \Omega_m^c - i\frac{\Gamma_m^c}{2}$ et s'exprime sur la base initiale ainsi

$$|\Pi_m^D\rangle = \sum_{l=1}^{N_e} m_0^{(l)} |e^{(l)}, \mathbf{0}\rangle + \sum_{n=1}^N \sum_{j=1}^{N_{ind}} m_n^{(j)} |g, 1_n^{(j)}\rangle, \quad (4.90)$$

$$|\Pi_m^G\rangle = \sum_{l=1}^{N_e} \left(m_0^{(l)}\right)^* |e^{(l)}, \mathbf{0}\rangle + \sum_{n=1}^N \sum_{j=1}^{N_{ind}} \left(m_n^{(j)}\right)^* |g, 1_n^{(j)}\rangle. \quad (4.91)$$

L'expression de l'amplitude de probabilité de l'état $|B, \mathbf{0}\rangle$ est alors donnée par

$$C_{B,\mathbf{0}}(t) = \langle B, \mathbf{0} | \psi(t) \rangle, \quad (4.92)$$

$$= \frac{1}{N_e} \sum_{m=1}^{dim} e^{-i\lambda_m^c t} \left(\sum_{l=1}^{N_e} m_0^{(l)} \right)^2, \quad (4.93)$$

et peut être injectée dans la relation (4.81) de la densité spectrale. On obtient

$$D(\omega) = \frac{\gamma_d}{2\pi N_e^2} \left| \sum_{m=1}^{dim} \frac{\left(\sum_{l=1}^{N_e} m_0^{(l)} \right)^2}{\omega - \Omega_m^c + i\frac{\Gamma_m^c}{2}} \right|^2, \quad (4.94)$$

après intégration. Le facteur $\left(\sum_{l=1}^{N_e} m_0^{(l)} \right)^2$ intervenant dans (4.94) donne la contribution de chaque état habillé dans la réponse spectrale en champ proche. Les fréquences angulaires Ω_m^c associées aux deux états habillés les plus importants sont représentées par les points noirs et gris sur les densités spectrales de la figure 4.15. Nous observons un bon accord entre les spectres et le résultat de la diagonalisation de l'Hamiltonien effectif. Il est aussi possible d'identifier les modes hybrides contribuant le plus en champ lointain. Pour cela nous considérons la définition du spectre d'émission effectif suivant

$$S_{eff}(\omega) = \frac{\gamma_1^r}{2\pi} \left| \sum_{j=1}^{N_{ind}} \int_0^{+\infty} C_{g,1}^{1,(j)}(t) e^{i\omega t} dt \right|^2, \quad (4.95)$$

qui fait intervenir une somme des amplitudes de probabilité des états de Löwdin du mode plasmonique dipolaire. L'amplitude $C_{g,1}^{1,(1)}(t)$ est obtenue en projetant l'état $|g, 1_1^{(j)}\rangle$ sur la fonction d'onde (4.89) :

$$C_{g,1}^{1,(j)}(t) = \langle g, 1_1^{(j)} | \psi(t) \rangle, \quad (4.96)$$

$$= \frac{1}{\sqrt{N_e}} \sum_{m=1}^{dim} m_1^{(j)} e^{-i\lambda_m^c t} \sum_{l=1}^{N_e} m_0^{(l)}, \quad (4.97)$$

pour ensuite être injectée dans la formule (4.95). On obtient

$$S_{eff}(\omega) = \frac{\gamma_1^r}{2\pi N_e} \left| \sum_{m=1}^{dim} \frac{\sum_{j=1}^{N_{ind}} m_1^{(j)} \sum_{l=1}^{N_e} m_0^{(l)}}{\omega - \Omega_m^c + i\frac{\Gamma_m^c}{2}} \right|^2. \quad (4.98)$$

La contribution des états habillés en champ lointain est donnée par le facteur $\sum_{j=1}^{N_{ind}} m_1^{(j)} \sum_{l=1}^{N_e} m_0^{(l)}$. Les spectres d'émissions radiatives calculés à partir de la relation (4.83) sont représentés sur la figure 4.16. Les deux levées de dégénérescence à $\omega_0 = 2.82$ eV et $\omega_0 = 2.93$ eV identifiées sur les densités spectrales des figure 4.15(b), (c) et (d) se manifestent aussi en champ lointain. La diagonalisation de l'Hamiltonien effectif met en évidence les deux modes hybrides prépondérant représentés par les points noirs et gris.

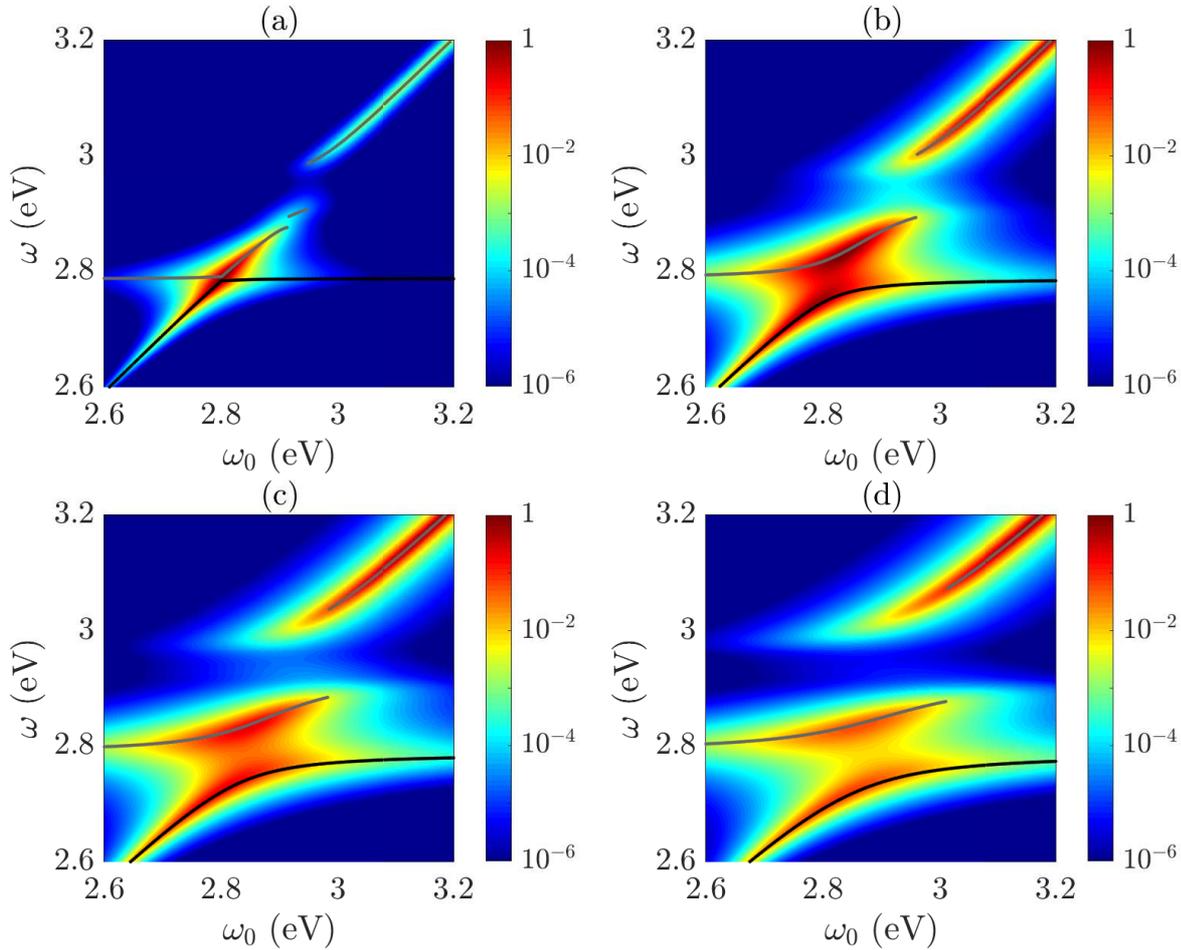


FIGURE 4.16 – Spectres d'émission radiative normalisés pour $N_e = 1$ en (a), $N_e = 15$ en (b), $N_e = 30$ en (c) et $N_e = 50$ en (d). Les émetteurs sont situés à 2 nm de la sphère et se répartissent selon la configuration spatiale visible sur la figure 4.14. Les fréquences angulaires Ω_m^c du mode hybride contribuant le plus en champ lointain sont représentées par les points noirs. Les fréquences angulaires du second plus important mode hybride sont représentées en gris.

Afin de caractériser la configuration en anneau représentée sur la figure 4.14, nous pouvons la comparer au cas idéal où tous les émetteurs sont situés à la même position comme cela est fait dans le chapitre 3. Pour

cette configuration idéale, le recouvrement spatial $\mu_n^{l,l'}(\omega_n)$ définie par (2.62) est égale à 1 quelque soit le mode plasmonique n et les émetteurs l et l' . De plus $g_n(\mathbf{r}_l) = g_n(\mathbf{r}_d) \forall l$ puisque tous les moments dipolaires $\mathbf{d}^{(l)}$ sont identiques. Ceci induit que $\delta\omega_0^{l,l'} = \delta\omega_0 \forall l, l'$ et que les couplages $g_n^{(lj)}$, découlant de l'orthonormalisation de Löwdin (2.133), prennent les valeurs :

$$g_n^{(1l)} = g_n(\mathbf{r}_d) \quad \forall l, \quad (4.99)$$

$$g_n^{(lj)} = 0 \quad \text{pour } j \neq 1. \quad (4.100)$$

L'Hamiltonien d'interaction constituant le dernier terme de l'Hamiltonien (4.84) s'écrit alors

$$\hat{H}_I = \hbar \sum_{n=1}^N g_n(\mathbf{r}_d) \sum_{l=1}^{N_e} \left(\hat{\sigma}_+^{(l)} \hat{b}_n^{(1)} + \hat{b}_n^{(1)\dagger} \hat{\sigma}_-^{(l)} \right), \quad (4.101)$$

et montre un couplage mutuel des émetteurs à un seul mode associé à l'opérateur de Löwdin $\hat{b}_n^{(1)}$ pour chaque mode plasmonique d'ordre n . On peut donc définir les opérateurs collectifs

$$\hat{S}_+ = \frac{1}{\sqrt{N_e}} \sum_{l=1}^{N_e} \hat{\sigma}_+^{(l)}, \quad (4.102)$$

$$\hat{S}_- = \hat{S}_+^\dagger, \quad (4.103)$$

afin de mettre en évidence le couplage collectif idéal $\sqrt{N_e}g_n(\mathbf{r}_d)$ dans l'Hamiltonien d'interaction

$$\hat{H}_I = \hbar \sum_{n=1}^N \sqrt{N_e}g_n(\mathbf{r}_d) \left(\hat{S}_+ \hat{b}_n^{(1)} + \hat{b}_n^{(1)\dagger} \hat{S}_- \right). \quad (4.104)$$

L'Hamiltonien effectif lié à la configuration idéale prend la forme

$$\begin{aligned} \hat{H}_{eff}^c = & \sum_{l=1}^{N_e} \hbar \left(\omega_0 - i\frac{\gamma_d}{2} \right) \hat{\sigma}_+^{(l)} \hat{\sigma}_-^{(l)} - \hbar N_e \delta\omega_0 \hat{S}_+ \hat{S}_- + \sum_{n=1}^N \hbar \left(\omega_n - i\frac{\gamma_n}{2} \right) \hat{b}_n^{(1)\dagger} \hat{b}_n^{(1)} \\ & + \hbar \sum_{n=1}^N \sqrt{N_e}g_n(\mathbf{r}_d) \left(\hat{S}_+ \hat{b}_n^{(1)} + \hat{b}_n^{(1)\dagger} \hat{S}_- \right), \end{aligned} \quad (4.105)$$

et peut être projeté dans la base à une excitation $\{|B, \mathbf{0}\rangle, |g, 1_1^{(1)}\rangle, |g, 1_2^{(1)}\rangle, \dots, |g, 1_N^{(1)}\rangle\}$ où $|g, 1_n^{(1)}\rangle$ est l'état où tous les émetteurs sont dans l'état $|g\rangle$ avec une excitation sur le mode de Löwdin 1 défini par $|1_n^{(1)}\rangle = \hat{b}_n^{(1)\dagger} |\mathbf{0}\rangle$. On obtient la forme matricielle suivante

$$\hat{H}_{eff}^c = \hbar \begin{pmatrix} \omega_0 - N_e \delta\omega_0 - i\frac{\gamma_d}{2} & \sqrt{N_e}g_1(\mathbf{r}_d) & \sqrt{N_e}g_2(\mathbf{r}_d) & \cdots & \sqrt{N_e}g_N(\mathbf{r}_d) \\ \sqrt{N_e}g_1(\mathbf{r}_d) & \omega_1 - i\frac{\gamma_1}{2} & 0 & \cdots & 0 \\ \sqrt{N_e}g_2(\mathbf{r}_d) & 0 & \omega_2 - i\frac{\gamma_2}{2} & \cdots & \vdots \\ \vdots & \vdots & \cdots & \ddots & 0 \\ \sqrt{N_e}g_N(\mathbf{r}_d) & 0 & \cdots & 0 & \omega_N - i\frac{\gamma_N}{2} \end{pmatrix}. \quad (4.106)$$

À noter que le décalage causé par le terme correctif vaut $N_e \delta\omega_0$ lorsque tous les émetteurs sont situés à la même position et qu'il devient donc important pour un grand nombre d'émetteurs. La diagonalisation de l'Hamiltonien (4.106) révèle les états hybrides

$$|\Pi_m^D\rangle = m_0^B |B, \mathbf{0}\rangle + \sum_{n=1}^N m_n^{(1)} |g, 1_n^{(1)}\rangle, \quad (4.107)$$

$$|\Pi_m^G\rangle = (m_0^B)^* |e, \mathbf{0}\rangle + \sum_{n=1}^N \left(m_n^{(1)} \right)^* |g, 1_n^{(1)}\rangle. \quad (4.108)$$

Parmi ces états, nous pouvons identifier ceux qui contribuent le plus dans la réponse spectrale en champ proche et en champ lointain. Pour la configuration idéale la densité spectrale et le spectre d'émission effectif prennent la forme suivante

$$D(\omega) = \frac{\gamma_d}{2\pi N_e^2} \left| \sum_{m=1}^{dim} \frac{(m_0^B)^2}{\omega - \Omega_m^c + i\frac{\Gamma_m^c}{2}} \right|^2, \quad (4.109)$$

$$S_{eff}(\omega) = \frac{\gamma_1^r}{2\pi} \left| \sum_{m=1}^{N+1} \frac{m_0^B m_1^{(1)}}{\omega - \Omega_m^c + i\frac{\Gamma_m^c}{2}} \right|^2. \quad (4.110)$$

et montre que le poids de chacune des fonctions Lorentziennes complexes est donné par $(m_0^B)^2$ pour la densité spectrale et $m_0^B m_1^{(1)}$ pour le spectre d'émission effectif. Les figures 4.17(a), (b) et (c) montrent les fréquences angulaires des deux plus importants modes hybrides et les densités spectrales pour 15, 30 et 50 émetteurs en configuration idéale. Pour $N_e = 15$, nous voyons une levée de dégénérescence $\Delta\omega = 340$ meV apparaître à la fréquence $\omega_0 = 2.94$ eV. Le spectre se décale progressivement vers les hautes fréquences (en ω_0) lorsque le nombre d'émetteur augmente et mène à un anti-croisement $\Delta\omega = 466$ meV à $\omega_0 = 3.01$ eV pour 30 émetteurs et $\Delta\omega = 596$ meV à $\omega_0 = 3.07$ eV pour 50 émetteurs. En comparaison, la configuration en anneau mène à un couplage collectif aux modes d'ordre élevé bien moins important car le recouvrement spatiale $\mu_n^{l,l'}$ n'est pas optimal comme le montre les figures 3.9 (b), (c) et (d). Aucun couplage fort avec le mode dipolaire n'est visible sur les spectres de la figure 4.17 car la configuration idéale favorise l'ensemble des modes plasmoniques à l'opposé de la configuration en anneau qui respecte uniquement la symétrie du mode dipolaire (voir figure 3.9(a)).

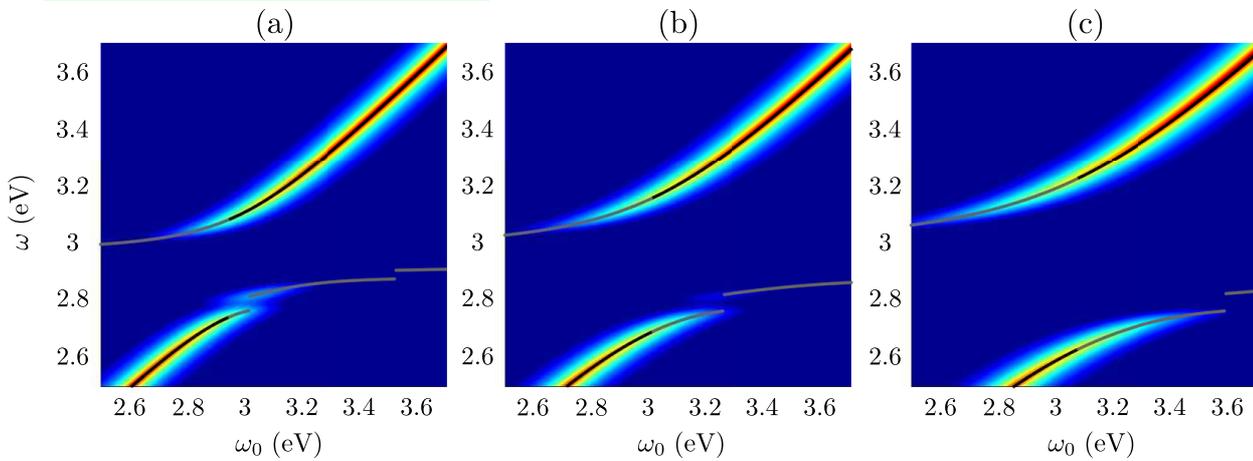


FIGURE 4.17 – Densité spectrale obtenue pour (a) 15, (b) 30, (c) 50 émetteurs en configuration idéale. Les fréquences angulaires du premier et second mode hybride les plus importants sont représentées respectivement par les points noirs et gris.

L'évolution des levées de dégénérescence discutées précédemment sont représentées sur la figure 4.18. La courbe bleue indique la levée attendue dans le cas d'un couplage mono-modal qui est donnée par $\Delta\omega = \sqrt{N_e}\Delta\omega_1$ avec $\Delta\omega_1$ la levée de dégénérescence pour un unique émetteur qui vaut ici 82 meV. L'évolution de l'anti-croisement est représentée en rouge pour la configuration idéale. Nous voyons qu'il respecte assez bien le comportement de couplage collectif que l'on peut observer en cavité. Le décrochage que l'on constate pour $N_e > 8$ est attribué à la difficulté de définir la fréquence de Rabi en couplage fort pour un système multi-modal. La courbe noire est associée à la levée de dégénérescence à la fréquence des modes d'ordre élevé dans la configuration en anneau et la courbe verte est associée à celle résultant du couplage au mode dipolaire. L'écart significatif par rapport au cas idéal montre que les émetteurs se couplent de manière discernable aux différents modes plasmoniques pour cette configuration, ce qui atténue fortement le couplage fort collectif.

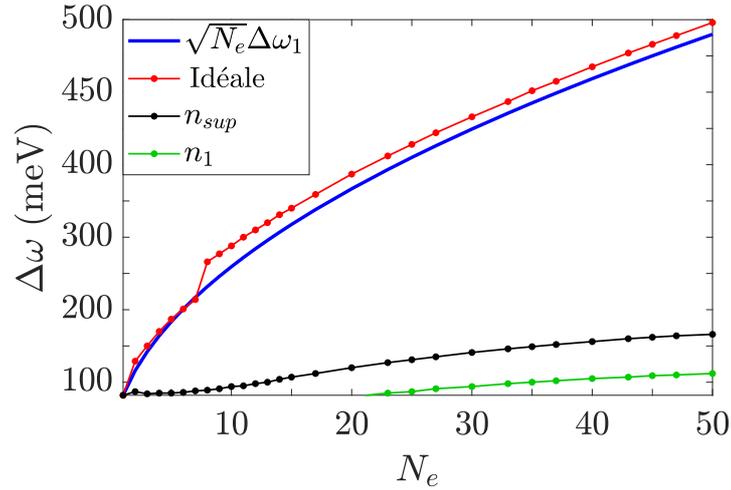


FIGURE 4.18 – Évolution des valeurs de l’anti-croisement $\Delta\omega$ en fonction du nombre d’émetteurs N_e . La courbe bleue donne l’évolution du couplage collectif en cavité. La courbe rouge est associée à la levée de dégénérescence de la configuration idéale visible sur les figure 4.17(a),(b) et (c). La levée observée à la fréquence des modes d’ordre élevé des figures 4.16(a), (b), (c) et (c) est représentée par la courbe noire et celle due à l’interaction avec le mode dipolaire par la courbe verte.

4.4 Conclusion

Nous avons pu constater que le comportement spectral du système nanoparticule-émetteur peut être décrit à l’aide du modèle effectif. Cela a permis d’établir une analogie forte entre les domaines de la plasmonique quantique et l’électrodynamique quantique en cavité. De plus, la diagonalisation de l’Hamiltonien effectif a permis de déterminer les états habillés du système hybride pouvant se manifester dans la levée de dégénérescence caractéristique du couplage fort. Bien que le modèle effectif soit local, nous avons pu définir un spectre d’émission effectif rayonné en champ lointain qui met en évidence le rôle des modes plasmoniques radiatifs. L’étude de l’interaction de plusieurs émetteurs avec la sphère est aussi envisageable en utilisant le modèle effectif. La répartition des émetteurs dans l’espace est un facteur déterminant qui peut atténuer grandement le phénomène de couplage collectif. Nous disposons ainsi d’un formalisme complet permettant l’ingénierie quantique plasmonique pour des dispositifs nano-optiques.

Annexe

4.A Densité spectrale et spectre d'émission d'un système hybride émetteurs-nanoparticule

4.A.1 Système

Nous considérons ici un ensemble de N_e émetteurs quantiques interagissant avec les plasmons de surface localisés d'une particule métallique de taille nanométrique. L'Hamiltonien du système dans l'approximation résonante peut se décomposer en trois parties :

$$\hat{H} = \hat{H}_{QE} + \hat{H}_R + \hat{H}_I, \quad (4.111)$$

$$\hat{H}_{QE} = \sum_{l=1}^{N_e} \hbar \left(\omega_0^{(l)} - i \frac{\gamma_d^{(l)}}{2} \right) \hat{\sigma}_+^{(l)} \hat{\sigma}_-^{(l)}, \quad (4.112)$$

$$\hat{H}_C = \int_0^{+\infty} d\omega \int d^3r \hbar \omega \hat{\mathbf{f}}^\dagger(\mathbf{r}, \omega) \cdot \hat{\mathbf{f}}(\mathbf{r}, \omega), \quad (4.113)$$

$$\hat{H}_I = - \sum_{l=1}^{N_e} \left[\hat{\sigma}_+^{(l)} \otimes \int_0^{+\infty} d\omega \mathbf{d}^{(l)} \cdot \hat{\mathbf{E}}(\mathbf{r}_l, \omega) + H.c \right], \quad (4.114)$$

où le premier terme \hat{H}_{QE} décrit l'ensemble des émetteurs avec pour chacun d'eux l'énergie de transition $\hbar \omega_0^{(l)}$, les pertes $\gamma_d^{(l)}$ associées à l'état excité en l'absence de la nanoparticule et les opérateurs de saut quantique $\hat{\sigma}_+^{(l)}$ et $\hat{\sigma}_-^{(l)}$. Le second terme définit l'énergie du réservoir dans lequel sont plongés les émetteurs. Il peut se décomposer selon une somme sur l'ensemble des excitations fondamentales polaritoniques d'énergie $\hbar \omega$ et associées aux opérateurs bosoniques $\hat{\mathbf{f}}^\dagger(\mathbf{r}, \omega)$ et $\hat{\mathbf{f}}(\mathbf{r}, \omega)$. Le dernier terme représente l'interaction entre les deux sous-ensembles (émetteurs et réservoir) et fait intervenir le moment dipolaire de chacun des dipôles $\mathbf{d}^{(l)}$ et le champ électrique quantifié à la position \mathbf{r}_l de chacun de ces dipôles. Ce dernier s'écrit sous la forme

$$\hat{\mathbf{E}}(\mathbf{r}, \omega) = i \sqrt{\frac{\hbar}{\pi \varepsilon_0}} \int d\mathbf{r}' \frac{\omega^2}{c^2} \sqrt{\varepsilon_I(\mathbf{r}', \omega)} \bar{\mathbf{G}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega) \cdot \hat{\mathbf{f}}(\mathbf{r}', \omega), \quad (4.115)$$

où $\bar{\mathbf{G}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega)$ est le tenseur de Green du système et $\varepsilon_I(\mathbf{r}', \omega)$ la partie imaginaire de la permittivité diélectrique du système. La fonction d'onde se décompose sur une base à une excitation

$$|\psi(t)\rangle = \sum_{l=1}^{N_e} C_{e,\mathbf{0}}^{(l)}(t) e^{-i\omega_0^{(l)}t} |e^{(l)}, \mathbf{0}\rangle + \int d^3r \int_0^{+\infty} d\omega e^{-i\omega t} \mathbf{C}_g(\mathbf{r}, \omega, t) |g, \mathbf{1}(\mathbf{r}, \omega)\rangle, \quad (4.116)$$

avec $|e^{(l)}, \mathbf{0}\rangle$ étant le vecteur d'état où seul le $i^{\text{ème}}$ émetteur est excité avec aucune excitation plasmonique. Le vecteur $|g, \mathbf{1}(\mathbf{r}, \omega)\rangle$ décrit l'ensemble des émetteurs dans leurs états fondamentaux et avec une excitation polaritonique fondamentale. La dynamique des amplitudes de probabilité est donnée par la projection de l'Hamiltonien (4.111) sur la fonction d'onde (4.116). On trouve

$$\dot{C}_{e,\mathbf{0}}^{(l)}(t) = - \frac{1}{\sqrt{\hbar \pi \varepsilon_0}} \int_0^{+\infty} d\omega \int d^3r \frac{\omega^2}{c^2} \sqrt{\varepsilon_I(\mathbf{r}, \omega)} \mathbf{d}^{(l)} \cdot \bar{\mathbf{G}}(\mathbf{r}_l, \mathbf{r}, \omega) \cdot \mathbf{C}_g(\mathbf{r}, \omega, t) e^{i(\omega_0^{(l)} - \omega)t} - \frac{\gamma_d^{(l)}}{2} C_{e,\mathbf{0}}^{(l)}(t), \quad (4.117)$$

$$\dot{\mathbf{C}}_g(\mathbf{r}, \omega, t) = \frac{1}{\sqrt{\hbar \pi \varepsilon_0}} \frac{\omega^2}{c^2} \sqrt{\varepsilon_I(\mathbf{r}, \omega)} \sum_{l=1}^{N_e} \bar{\mathbf{G}}^*(\mathbf{r}, \mathbf{r}_l, \omega) \cdot (\mathbf{d}^{(l)})^* C_{e,\mathbf{0}}^{(l)}(t) e^{i(\omega - \omega_0^{(l)})t}. \quad (4.118)$$

4.A.2 Densité spectrale

Il est possible de définir dans un premier temps le comportement spectral de chaque émetteur localement à partir de la densité spectrale définie selon (4.12), en représentation d'interaction :

$$D_l(\omega) = \frac{\gamma_d^{(l)}}{2\pi} \left| \int_0^{+\infty} C_{e,\mathbf{0}}^{(l)}(t) e^{i(\omega - \omega_0^{(l)})t} dt \right|^2, \quad (4.119)$$

$$= \frac{\gamma_d^{(l)}}{2\pi} \left| \mathcal{TF} \left[C_{e,\mathbf{0}}^{(l)} \right] (\omega) \right|^2, \quad (4.120)$$

où $\mathcal{TF} [f(t)] (\omega)$ est la transformée de Fourier (TF) de la fonction $f(t)$ définie entre 0 et $+\infty$. Ce spectre peut être obtenu à partir de la transformée de Fourier de l'équation différentielle régissant la dynamique de l'amplitude de probabilité $C_{e,\mathbf{0}}^{(l)}(t)$. Tout d'abord, il est nécessaire de réécrire l'équation (4.117) en injectant la forme intégrée de l'équation (4.118) dans celle-ci. On a alors

$$\begin{aligned} \dot{C}_{e,\mathbf{0}}^{(l)}(t) &= -\frac{1}{\hbar\pi\epsilon_0} \int_0^{+\infty} d\omega \frac{\omega^2}{c^2} e^{i(\omega_0^{(l)} - \omega)t} \sum_{j=1}^{N_e} \left[\int_0^t dt' C_{e,\mathbf{0}}^{(j)}(t') e^{i(\omega - \omega_0^{(j)})t'} \right. \\ &\quad \left. \times \int d^3r \frac{\omega^2}{c^2} \epsilon_I(\mathbf{r}, \omega) \mathbf{d}^{(l)} \cdot \bar{\mathbf{G}}(\mathbf{r}_l, \mathbf{r}, \omega) \bar{\mathbf{G}}^*(\mathbf{r}, \mathbf{r}_j, \omega) \cdot (\mathbf{d}^{(j)})^* \right] - \frac{\gamma_d^{(l)}}{2} C_{e,\mathbf{0}}^{(l)}(t), \end{aligned} \quad (4.121)$$

$$\dot{C}_{e,\mathbf{0}}^{(l)}(t) = \int_0^t dt' \sum_{j=1}^{N_e} \mathcal{K}_{lj}(t - t') C_{e,\mathbf{0}}^{(j)}(t') - \frac{\gamma_d}{2} C_{e,\mathbf{0}}^{(l)}(t), \quad (4.122)$$

avec

$$\mathcal{K}_{lj}(t - t') = -\frac{1}{\hbar\pi\epsilon_0} \int_0^{+\infty} d\omega \frac{\omega^2}{c^2} e^{-i(\omega - \omega_0)(t - t')} \mathbf{d}^{(l)} \cdot \Im \left[\bar{\mathbf{G}}(\mathbf{r}_l, \mathbf{r}_j, \omega) \right] \cdot (\mathbf{d}^{(j)})^*. \quad (4.123)$$

Pour passer de l'équation (4.121) à l'équation (4.122), nous avons utilisé la relation

$$\int d^3r \frac{\omega^2}{c^2} \epsilon_I(\mathbf{r}, \omega) \bar{\mathbf{G}}(\mathbf{r}_l, \mathbf{r}, \omega) \bar{\mathbf{G}}^*(\mathbf{r}, \mathbf{r}_j, \omega) = \Im \left[\bar{\mathbf{G}}(\mathbf{r}_l, \mathbf{r}_j, \omega) \right], \quad (4.124)$$

et nous avons supposé que tous les émetteurs sont identiques, c'est à dire que $\omega_0^{(l)} = \omega_0$ et $\gamma_d^{(l)} = \gamma_d$ quel que soit l'émetteur d'indice l . En considérant les propriétés de la transformée de Fourier sur un produit de convolution et sur une fonction dérivée, nous pouvons déterminer la TF de l'équation (4.122) :

$$-C_{e,\mathbf{0}}^{(l)}(0) - i(\omega - \omega_0) \mathcal{TF} \left[C_{e,\mathbf{0}}^{(l)} \right] (\omega) = \sum_{j=1}^{N_e} \mathcal{TF} [\mathcal{K}_{lj}(t)] (\omega) \mathcal{TF} \left[C_{e,\mathbf{0}}^{(j)}(t) \right] (\omega) - \frac{\gamma_d}{2} \mathcal{TF} \left[C_{e,\mathbf{0}}^{(l)}(t) \right] (\omega), \quad (4.125)$$

où $C_{e,\mathbf{0}}^{(l)}(0)$ est la condition initiale sur l'état $|e^{(l)}, \mathbf{0}\rangle$. Le calcul de la transformée de Fourier de la fonction $\mathcal{K}_{lj}(t)$ donne :

$$\mathcal{TF} [\mathcal{K}_{lj}(t)] (\omega) = -\frac{1}{\hbar\pi\epsilon_0} \int_0^{+\infty} d\omega' \frac{\omega'^2}{c^2} \mathbf{d}^{(l)} \cdot \Im \left[\bar{\mathbf{G}}(\mathbf{r}_l, \mathbf{r}_j, \omega') \right] \cdot (\mathbf{d}^{(j)})^* \int_0^{+\infty} dt e^{-i(\omega' - \omega)t}, \quad (4.126)$$

$$= \frac{i\omega^2}{\hbar\epsilon_0 c^2} \mathbf{d}^{(l)} \cdot \bar{\mathbf{G}}(\mathbf{r}_l, \mathbf{r}_j, \omega) \cdot (\mathbf{d}^{(j)})^*. \quad (4.127)$$

Pour passer de (4.126) à (4.127), nous avons utilisé l'égalité suivante

$$\int_0^{+\infty} dt e^{-i(\omega' - \omega)t} = \lim_{\epsilon \rightarrow 0} \int_0^{+\infty} dt e^{-i(\omega' - \omega - i\epsilon)t} = \pi\delta(\omega' - \omega) - iP \left(\frac{1}{\omega' - \omega} \right), \quad (4.128)$$

où $\delta(\omega' - \omega)$ et $P\left(\frac{1}{\omega' - \omega}\right)$ sont respectivement la distribution de Dirac et la partie principale de Cauchy et nous avons eu recours aux relations de dispersions [106] :

$$u(x_0) = \frac{1}{\pi} P \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{v(x)}{x - x_0} dx, \quad (4.129)$$

sur les fonctions complexes

$$f(x_0) = u(x_0) + iv(x_0). \quad (4.130)$$

Pour résoudre le système d'équations (4.125) pour chaque émetteur, nous allons écrire celles-ci sous forme vectorielle. Nous définissons le vecteur colonne

$$C_{e,\mathbf{0}}(t) = \begin{bmatrix} C_{e,\mathbf{0}}^{(1)}(t) \\ C_{e,\mathbf{0}}^{(2)}(t) \\ C_{e,\mathbf{0}}^{(3)}(t) \\ \vdots \\ C_{e,\mathbf{0}}^{(N_e)}(t) \end{bmatrix}, \quad (4.131)$$

regroupant les amplitudes de probabilité des états excités de chaque émetteur. Ainsi il est possible de réunir les N_e équations données par la relation (4.125) :

$$-C_{e,\mathbf{0}}(0) + i(\omega_0 - \omega) \mathcal{TF} [C_{e,\mathbf{0}}(t)](\omega) = M(\omega) \mathcal{TF} [C_{e,\mathbf{0}}(t)](\omega) - \frac{\gamma_d}{2} \mathcal{TF} [C_{e,\mathbf{0}}(t)](\omega), \quad (4.132)$$

avec $M(\omega)$ étant une matrice de taille $N_e \times N_e$ dont les éléments sont

$$M_{lj}(\omega) = \mathcal{TF} [\mathcal{K}_{lj}(t)](\omega) = \frac{i\omega^2}{\hbar\varepsilon_0 c^2} \mathbf{d}^{(l)} \cdot \bar{\mathbf{G}}(\mathbf{r}_l, \mathbf{r}_j, \omega) \cdot (\mathbf{d}^{(j)})^*. \quad (4.133)$$

Le système est alors facilement inversible et conduit à l'expression des TF des amplitudes de probabilité pour chaque émetteur :

$$\mathcal{TF} [C_{e,\mathbf{0}}(t)](\omega) = \left[\left(i(\omega_0 - \omega) + \frac{\gamma_d}{2} \right) \mathbf{1}_{N_e} - M(\omega) \right]^{-1} C_{e,\mathbf{0}}(0), \quad (4.134)$$

avec $\mathbf{1}_{N_e}$ la matrice identité de taille $N_e \times N_e$. La densité spectrale de l'émetteur l est obtenue à partir du module carré de la composante l du vecteur $\mathcal{TF} [C_{e,\mathbf{0}}(t)](\omega)$:

$$D_l(\omega) = \frac{\gamma_d}{2\pi} \left| \left\{ \left[\left(i(\omega_0 - \omega) + \frac{\gamma_d}{2} \right) \mathbf{1}_{N_e} - M(\omega) \right]^{-1} C_{e,\mathbf{0}}(0) \right\}_l \right|^2. \quad (4.135)$$

Il est aussi possible de définir une densité spectrale globale

$$D(\omega) = \frac{\gamma_d}{2\pi} \left| \int_0^{+\infty} C_\alpha(t) e^{i\omega t} dt \right|^2, \quad (4.136)$$

ou $C_\alpha(t)$ est l'amplitude de probabilité de la superposition d'état normalisée

$$|\alpha\rangle = \frac{1}{\sqrt{\sum_{l=1}^{N_e} |a_l|^2}} \sum_{l=1}^{N_e} a_l |e^{(l)}, \mathbf{0}\rangle. \quad (4.137)$$

Après projection de l'état $|\alpha\rangle$ sur la fonction d'onde (4.116), nous obtenons

$$D(\omega) = \frac{\gamma_d}{2\pi} \frac{1}{\sum_{l=1}^{N_e} |a_l|^2} \left| \sum_{l=1}^{N_e} a_l \left\{ \left[\left(i(\omega_0 - \omega) + \frac{\gamma_d}{2} \right) \mathbf{1}_{N_e} - M(\omega) \right]^{-1} C_{e,\mathbf{0}}(0) \right\}_l \right|^2. \quad (4.138)$$

4.A.3 Spectre d'émission

Le spectre d'émission en champ lointain enregistré par un détecteur situé à une position \mathbf{r} suffisamment loin du système peut être défini par :

$$S(\mathbf{r}, \omega) = \frac{1}{2\pi} \int_0^{+\infty} dt_2 \int_0^{+\infty} dt_1 e^{-i\omega(t_2-t_1)} \langle \psi(t_2) | \hat{\mathbf{E}}^-(\mathbf{r}) \cdot \hat{\mathbf{E}}^+(\mathbf{r}) | \psi(t_1) \rangle, \quad (4.139)$$

avec

$$\hat{\mathbf{E}}^+(\mathbf{r}) = \int_0^{+\infty} d\omega \hat{\mathbf{E}}(\mathbf{r}, \omega), \quad \hat{\mathbf{E}}^-(\mathbf{r}) = [\hat{\mathbf{E}}^+(\mathbf{r})]^\dagger. \quad (4.140)$$

On peut réécrire l'expression de ce spectre pour faire apparaître le produit de deux termes étant transposés conjugués l'un de l'autre :

$$S(\mathbf{r}, \omega) = \frac{1}{2\pi} \left[\int_0^{+\infty} dt_2 e^{-i\omega t_2} \langle \psi(t_2) | \hat{\mathbf{E}}^-(\mathbf{r}) \right] \cdot \left[\int_0^{+\infty} dt_1 e^{i\omega t_1} \hat{\mathbf{E}}^+(\mathbf{r}) | \psi(t_1) \rangle \right], \quad (4.141)$$

$$= \frac{1}{2\pi} \left| \int_0^{+\infty} dt e^{i\omega t} \hat{\mathbf{E}}^+(\mathbf{r}) | \psi(t) \rangle \right|^2. \quad (4.142)$$

Le calcul se poursuit en appliquant l'opérateur champ électrique (4.115) sur la fonction d'onde (4.116). On obtient

$$\hat{\mathbf{E}}^+(\mathbf{r}) | \psi(t) \rangle = i \sqrt{\frac{\hbar}{\pi \varepsilon_0}} \int_0^{+\infty} d\omega' \frac{\omega'^2}{c^2} \int d^3 r' \sqrt{\varepsilon_I(\mathbf{r}, \omega')} \bar{\mathbf{G}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega') \cdot \mathbf{C}_g(\mathbf{r}', \omega', t) e^{-i\omega' t} |g, \mathbf{0}\rangle. \quad (4.143)$$

Ensuite, l'équation (4.118) doit être intégrée formellement puis injectée dans l'équation (4.143), ce qui donne :

$$\hat{\mathbf{E}}^+(\mathbf{r}) | \psi(t) \rangle = \frac{i}{\pi \varepsilon_0} \int_0^{+\infty} d\omega' \frac{\omega'^2}{c^2} e^{-i\omega' t} \sum_{l=1}^{N_e} \Im \left[\bar{\mathbf{G}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_l, \omega') \right] \cdot (\mathbf{d}^{(l)})^* \int_0^t dt' C_{e,0}^{(l)}(t') e^{i(\omega' - \omega_0)t'} |g, \mathbf{0}\rangle. \quad (4.144)$$

Enfin, il ne reste plus qu'à utiliser la relation (4.144) pour développer l'expression (4.142) :

$$S(\mathbf{r}, \omega) = \frac{1}{2\pi} \left| \frac{i}{\pi \varepsilon_0} \int_0^{+\infty} dt e^{i\omega t} \int_0^{+\infty} d\omega' \frac{\omega'^2}{c^2} e^{-i\omega' t} \sum_{l=1}^{N_e} \Im \left[\bar{\mathbf{G}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_l, \omega') \right] \cdot (\mathbf{d}^{(l)})^* \int_0^t dt' C_{e,0}^{(l)}(t') e^{i(\omega' - \omega_0)t'} \right|^2, \quad (4.145)$$

$$= \frac{1}{2\pi} \left| \int_0^{+\infty} dt e^{-i(\omega_0 - \omega)t} \int_0^{+\infty} d\omega' \frac{\omega'^2}{\pi \varepsilon_0 c^2} \sum_{l=1}^{N_e} \Im \left[\bar{\mathbf{G}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_l, \omega') \right] \cdot (\mathbf{d}^{(l)})^* \int_0^t dt' C_{e,0}^{(l)}(t') e^{-i(\omega' - \omega_0)(t-t')} \right|^2, \quad (4.146)$$

$$= \frac{1}{2\pi} \left| \int_0^{+\infty} dt e^{-i(\omega_0 - \omega)t} \sum_{l=1}^{N_e} \int_0^t dt' C_{e,0}^{(l)}(t') \bar{\mathcal{K}}_l(t-t') \right|^2, \quad (4.147)$$

avec

$$\bar{\mathcal{K}}_l(t-t') = \int_0^{+\infty} d\omega' \frac{\omega'^2}{\pi \varepsilon_0 c^2} \Im \left[\bar{\mathbf{G}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_l, \omega') \right] \cdot (\mathbf{d}^{(l)})^* e^{-i(\omega' - \omega_0)(t-t')}. \quad (4.148)$$

La relation (4.147) nous montre que le spectre $S(\mathbf{r}, \omega)$ fait intervenir la transformée de Fourier du produit de convolution entre l'amplitude de probabilité $C_{e,0}^{(l)}(t')$ et la fonction $\bar{\mathcal{K}}_l(t-t')$. On peut donc écrire

$$S(\mathbf{r}, \omega) = \frac{1}{2\pi} \left| \sum_{l=1}^{N_e} \mathcal{TF} \left[C_{e,0}^{(l)}(t) \right] (\omega) \mathcal{TF} \left[\bar{\mathcal{K}}_l(t) \right] (\omega) \right|^2. \quad (4.149)$$

Le premier terme $\mathcal{TF} \left[C_{e,0}^{(l)}(t) \right] (\omega)$ est donné par la composante l du vecteur défini par l'équation (4.134). La transformée de Fourier de la fonction $\bar{\mathcal{K}}_l(t)$ se calcule de la même manière que celle de la fonction $\mathcal{K}_{lj}(t)$ (voir équations (4.126),(4.127) et (4.128)). On a alors :

$$\mathcal{TF} [\bar{\mathcal{K}}_l(t)] (\omega) = -i \frac{\omega^2}{\varepsilon_0 c^2} \bar{\bar{\mathbf{G}}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_l, \omega) \left(\mathbf{d}^{(l)} \right)^* . \quad (4.150)$$

Conclusion générale et perspectives

Le travail de thèse présenté dans ce manuscrit concerne la description quantique de l'interaction entre un ou plusieurs émetteurs et les plasmons de surface localisés supportés par une nano-particule métallique.

Dans un premier temps, nous avons détaillé la construction d'un modèle basé sur la quantification du champ électromagnétique en présence de la nano-particule métallique. La décomposition modale de la densité d'états locale est une étape clé qui met en évidence des profils de résonance lorentziens témoignant de la structuration du continuum plasmonique. Ces profils lorentziens permettent la discrétisation dans le domaine des fréquences en définissant des pseudo-modes plasmoniques présentant des pertes importantes qu'il est possible de décrire à l'aide d'un Hamiltonien non-hermitien. Pour un ensemble de plusieurs émetteurs, nous avons mis en évidence la notion de recouvrement spatial des champs plasmoniques qui décrivent les interactions entre émetteurs portées par les plasmons. Nous avons aussi introduit un modèle heuristique pour lequel les pertes du système sont causées par un couplage à un environnement. Cela nous a permis d'établir une équation maîtresse équivalente à l'Hamiltonien effectif mais aussi d'inclure la contribution de l'espace libre dans le modèle effectif où les modes radiatifs sont à l'origine des profils de résonance de type Fano que l'on peut observer lorsque les dimensions de la particule deviennent suffisamment importantes.

Par la suite, nous avons étudié les processus de relaxation collective d'un ensemble d'émetteurs couplés faiblement aux plasmons localisés de la nano-sphère. Le modèle effectif a été adapté en procédant à une élimination adiabatique des modes plasmoniques. Le phénomène de superradiance pouvant naître de cette relaxation collective a été étudié à travers l'évolution du taux de relaxation total et radiatif. Selon la configuration spatiale des émetteurs, le couplage aux modes plasmoniques peut rendre les émetteurs discernables et peut ainsi atténuer le phénomène de superradiance. La présence de la nano-particule entraîne une exaltation des processus de relaxation par effet Purcell permettant de lutter contre les processus de décohérence. Cependant, à courte distance, on observe un blocage de la superradiance.

Enfin, nous avons pu caractériser le régime de couplage fort entre émetteurs et plasmons localisés au travers de la densité spectrale et du spectre d'émission radiative. Lorsque l'émetteur est suffisamment proche de la sphère, le couplage aux nombreux modes plasmoniques d'ordre élevé peut compenser les pertes des plasmons afin d'atteindre ce régime de couplage fort. La représentation des états habillés du système est rendue possible à partir de la diagonalisation de l'Hamiltonien effectif. L'introduction de plusieurs émetteurs induit un couplage collectif renforçant plus ou moins le couplage fort selon la configuration spatiale des émetteurs.

Suite à ce travail, de nombreuses pistes peuvent être explorées et des questions restent non élucidées. Tout d'abord, la procédure de quantification du champ électromagnétique en milieu dispersif et absorbant nécessite d'être clarifiée pour que la contribution de l'espace libre soit intégrée. C'est une étape fondamentale pour décrire de manière exacte les polaritons issus de l'hybridation du champ électromagnétique et des modes de vibrations de la matière.

En électrodynamique quantique en cavité, le vecteur de Poynting quantique est une grandeur observable permettant de décrire l'absorption de photon par un détecteur. Il serait intéressant de l'utiliser pour mieux comprendre les processus de conversion entre plasmons et photons qui interviennent dans les nano-antennes plasmoniques. Cela aiderait à définir de manière exacte la partie radiative détectée en champ lointain et pourrait aboutir à l'adaptation du formalisme d'entrée-sortie (input-output), utilisé habituellement en électrodynamique quantique en cavité, à la plasmonique quantique. Il est aussi possible d'introduire de nouveaux termes dans l'Hamiltonien effectif pour prendre en compte des effets non-linéaires (Effet Kerr, conversion spontanée des-

pendante - SPDC [107]) mais aussi des phénomènes de décohérence affectant les émetteurs.

De nombreuses expériences mettent en jeu des structures plasmoniques ayant des géométries diverses (nano-prisme, ellipsoïde, nano-cube, etc). Le modèle effectif peut être utilisé comme modèle théorique pour mieux comprendre les mécanismes d'interactions qui s'y produisent. Pour cela, le tenseur de Green intervenant dans la procédure de quantification peut être étendu sur des fonctions propres du système ou calculé numériquement lorsque la géométrie des structures est trop complexe [108]. Selon le régime de couplage, il est possible d'envisager des sources brillantes, des nano-lasers à bas-seuil, l'amplification de plasmons de surface par émission stimulé (SPASER), des sources de photons uniques, etc.

Bibliographie

- [1] Anthony E Siegman. Lasers, university science books. *Mill Valley, CA*, 37(208) :169, 1986.
- [2] Stefan W Hell. Far-field optical nanoscopy. *science*, 316(5828) :1153–1158, 2007.
- [3] Loic Lanco and Pascale Senellart. *A Highly Efficient Single Photon-Single Quantum Dot Interface*, pages 39–71. Springer International Publishing, Cham, 2015.
- [4] Kerry J Vahala. Optical microcavities. *nature*, 424(6950) :839, 2003.
- [5] Haruka Tanji-Suzuki, Ian D Leroux, Monika H Schleier-Smith, Marko Cetina, Andrew T Grier, Jonathan Simon, and Vladan Vuletić. Interaction between atomic ensembles and optical resonators : Classical description. In *Advances in atomic, molecular, and optical physics*, volume 60, pages 201–237. Elsevier, 2011.
- [6] Lukas Novotny and Bert Hecht. *Principles of nano-optics*. Cambridge university press, 2012.
- [7] Edward M Purcell, H Co Torrey, and Robert V Pound. Resonance absorption by nuclear magnetic moments in a solid. *Physical review*, 69(1-2) :37, 1946.
- [8] JM Gérard, B Sermage, B Gayral, B Legrand, E Costard, and V Thierry-Mieg. Enhanced spontaneous emission by quantum boxes in a monolithic optical microcavity. *Physical review letters*, 81(5) :1110, 1998.
- [9] J-M Gérard and Bruno Gayral. Strong purcell effect for inas quantum boxes in three-dimensional solid-state microcavities. *Journal of lightwave technology*, 17(11) :2089–2095, 1999.
- [10] Sonia Buckley, Kelley Rivoire, and Jelena Vučković. Engineered quantum dot single-photon sources. *Reports on Progress in Physics*, 75(12) :126503, 2012.
- [11] O Gazzano, MP Almeida, AK Nowak, SL Portalupi, A Lemaître, I Sagnes, AG White, and P Senellart. Entangling quantum-logic gate operated with an ultrabright semiconductor single-photon source. *Physical review letters*, 110(25) :250501, 2013.
- [12] Marina Radulaski, Kevin A Fischer, and Jelena Vučković. Nonclassical light generation from iii–v and group-iv solid-state cavity quantum systems. In *Advances In Atomic, Molecular, and Optical Physics*, volume 66, pages 111–179. Elsevier, 2017.
- [13] Andrei Faraon, Ilya Fushman, Dirk Englund, and Jelena Vučković. Photon blockade in a photonic crystal cavity with a strongly coupled quantum dot. In *Advanced Optical Concepts in Quantum Computing, Memory, and Communication II*, volume 7225, page 72250D. International Society for Optics and Photonics, 2009.
- [14] Andrei Faraon, Ilya Fushman, Dirk Englund, Nick Stoltz, Pierre Petroff, and Jelena Vučković. Coherent generation of non-classical light on a chip via photon-induced tunnelling and blockade. *Nature Physics*, 4(11) :859, 2008.
- [15] Mario Agio. Optical antennas as nanoscale resonators. *Nanoscale*, 4(3) :692–706, 2012.
- [16] Pascal Anger, Palash Bharadwaj, and Lukas Novotny. Enhancement and quenching of single-molecule fluorescence. *Physical review letters*, 96(11) :113002, 2006.
- [17] Sergei Kühn, Ulf Håkanson, Lavinia Rogobete, and Vahid Sandoghdar. Enhancement of single-molecule fluorescence using a gold nanoparticle as an optical nanoantenna. *Physical review letters*, 97(1) :017402, 2006.
- [18] Kasey J Russell, Tsung-Li Liu, Shanying Cui, and Evelyn L Hu. Large spontaneous emission enhancement in plasmonic nanocavities. *Nature Photonics*, 6(7) :459, 2012.

- [19] Thang B Hoang, Gleb M Akselrod, Christos Argyropoulos, Jiani Huang, David R Smith, and Maiken H Mikkelsen. Ultrafast spontaneous emission source using plasmonic nanoantennas. *Nature communications*, 6 :7788, 2015.
- [20] Reémi Faggiani, Jianji Yang, and Philippe Lalanne. Quenching, plasmonic, and radiative decays in nanogap emitting devices. *ACS Photonics*, 2(12) :1739–1744, 2015.
- [21] Rohit Chikkaraddy, Bart De Nijs, Felix Benz, Steven J Barrow, Oren A Scherman, Edina Rosta, Angela Demetriadou, Peter Fox, Ortwin Hess, and Jeremy J Baumberg. Single-molecule strong coupling at room temperature in plasmonic nanocavities. *Nature*, 535(7610) :127, 2016.
- [22] Kotni Santhosh, Ora Bitton, Lev Chuntonov, and Gilad Haran. Vacuum rabi splitting in a plasmonic cavity at the single quantum emitter limit. *Nature communications*, 7 :ncomms11823, 2016.
- [23] G Colas des Francs, J Barthes, A Bouhelier, Jean Claude Weeber, Alain Dereux, Aurélien Cuche, and Christian Girard. Plasmonic purcell factor and coupling efficiency to surface plasmons. implications for addressing and controlling optical nanosources. *Journal of Optics*, 18(9) :094005, 2016.
- [24] Mark S Tame, KR McEnery, ŞK Özdemir, Jinhyoung Lee, SA Maier, and MS Kim. Quantum plasmonics. *Nature Physics*, 9(6) :329, 2013.
- [25] Francois Marquier, Christophe Sauvan, and Jean-Jacques Greffet. Revisiting quantum optics with surface plasmons and plasmonic resonators. *ACS photonics*, 4(9) :2091–2101, 2017.
- [26] James S Fakonas, Hyunseok Lee, Yousif A Kelaita, and Harry A Atwater. Two-plasmon quantum interference. *Nature Photonics*, 8(4) :317, 2014.
- [27] Marie-Christine Dheur, Eloïse Devaux, Thomas W Ebbesen, Alexandre Baron, Jean-Claude Rodier, Jean-Paul Hugonin, Philippe Lalanne, Jean-Jacques Greffet, Gaétan Messin, and François Marquier. Single-plasmon interferences. *Science advances*, 2(3) :e1501574, 2016.
- [28] Benjamin Vest, Marie-Christine Dheur, Éloïse Devaux, Alexandre Baron, Emmanuel Rousseau, Jean-Paul Hugonin, Jean-Jacques Greffet, Gaétan Messin, and François Marquier. Anti-coalescence of bosons on a lossy beam splitter. *Science*, 356(6345) :1373–1376, 2017.
- [29] S Aberra Guebrou, C Symonds, E Homeyer, JC Plenet, Yu N Gartstein, Vladimir M Agranovich, and J Bellessa. Coherent emission from a disordered organic semiconductor induced by strong coupling with surface plasmons. *Physical Review Letters*, 108(6) :066401, 2012.
- [30] Gülis Zengin, Martin Wersäll, Sara Nilsson, Tomasz J Antosiewicz, Mikael Käll, and Timur Shegai. Realizing strong light-matter interactions between single-nanoparticle plasmons and molecular excitons at ambient conditions. *Physical review letters*, 114(15) :157401, 2015.
- [31] Frédéric Peyskens, Darrick Chang, and Dirk Englund. Integrated nanoplasmonic quantum interfaces for room-temperature single-photon sources. *Physical Review B*, 96(23) :235151, 2017.
- [32] Nicholas Rivera, Gilles Rosolen, John D Joannopoulos, Ido Kaminer, and Marin Soljačić. Making two-photon processes dominate one-photon processes using mid-ir phonon polaritons. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 114(52) :13607–13612, 2017.
- [33] Stephen Wein, Nikolai Lauk, Roohollah Ghobadi, and Christoph Simon. Feasibility of efficient room-temperature solid-state sources of indistinguishable single photons using ultrasmall mode volume cavities. *Physical Review B*, 97(20) :205418, 2018.
- [34] Mark I Stockman. Spaser action, loss compensation, and stability in plasmonic systems with gain. *Physical review letters*, 106(15) :156802, 2011.
- [35] Darrick E Chang, Anders S Sørensen, Eugene A Demler, and Mikhail D Lukin. A single-photon transistor using nanoscale surface plasmons. *Nature Physics*, 3(11) :807, 2007.
- [36] Günter Kewes, Felix Binkowski, Sven Burger, Lin Zschiedrich, and Oliver Benson. Heuristic modeling of strong coupling in plasmonic resonators. *ACS Photonics*, 5(10) :4089–4097, 2018.
- [37] James T Hugall, Anshuman Singh, and Niek F van Hulst. Plasmonic cavity coupling. *Acs Photonics*, 5(1) :43–53, 2018.
- [38] Christophe Sauvan, Jean-Paul Hugonin, IS Maksymov, and Philippe Lalanne. Theory of the spontaneous optical emission of nanosize photonic and plasmon resonators. *Physical Review Letters*, 110(23) :237401, 2013.

- [39] BJ Dalton, Stephen M Barnett, and BM Garraway. Theory of pseudomodes in quantum optical processes. *Physical Review A*, 64(5) :053813, 2001.
- [40] Heinz-Peter Breuer, Francesco Petruccione, et al. *The theory of open quantum systems*. Oxford University Press on Demand, 2002.
- [41] B Bellomo, G Compagno, R Lo Franco, A Ridolfo, and S Savasta. Dynamics and extraction of quantum discord in a multipartite open system. *International Journal of Quantum Information*, 9(07n08) :1665–1676, 2011.
- [42] Edo Waks and Deepak Sridharan. Cavity qed treatment of interactions between a metal nanoparticle and a dipole emitter. *Physical Review A*, 82(4) :043845, 2010.
- [43] L Knoll, S Scheel, and Dirk-Gunnar Welsch. Qed in dispersing and absorbing dielectric media. *Coherence and Statistics of Photons and Atoms*, J. Perina (ed.), Wiley-Interscience, 2001.
- [44] B Huttner and SM Barnett. Dispersion and loss in a hopfield dielectric. *EPL (Europhysics Letters)*, 18(6) :487, 1992.
- [45] Ho Trung Dung, Ludwig Knöll, and Dirk-Gunnar Welsch. Three-dimensional quantization of the electromagnetic field in dispersive and absorbing inhomogeneous dielectrics. *Physical Review A*, 57(5) :3931, 1998.
- [46] Thomas Gerard Philbin. Canonical quantization of macroscopic electromagnetism. *New Journal of Physics*, 12(12) :123008, 2010.
- [47] V Dorier, J Lampart, S Guérin, and HR Jauslin. Canonical quantization for quantum plasmonics with finite nanostructures. *arXiv preprint arXiv :1810.08014*, 2018.
- [48] Aurélien Drezet. Quantizing polaritons in inhomogeneous dissipative systems. *Physical Review A*, 95(2) :023831, 2017.
- [49] Salvatore Savasta, Omar Di Stefano, and Raffaello Girlanda. Light quantization for arbitrary scattering systems. *Physical Review A*, 65(4) :043801, 2002.
- [50] Maciej Zworski. Resonances in physics and geometry. *Notices of the AMS*, 46(3) :319–328, 1999.
- [51] Kostas D Kokkotas and Bernd G Schmidt. Quasi-normal modes of stars and black holes. *Living Reviews in Relativity*, 2(1) :2, 1999.
- [52] José Luis Jaramillo, Juan Antonio Valiente Kroon, and Ericourgoulhon. From geometry to numerics : interdisciplinary aspects in mathematical and numerical relativity. *Classical and Quantum Gravity*, 25(9) :093001, 2008.
- [53] Philippe Lalanne, Wei Yan, Kevin Vynck, Christophe Sauvan, and Jean-Paul Hugonin. Light interaction with photonic and plasmonic resonances. *Laser & Photonics Reviews*, 12(5) :1700113, 2018.
- [54] Sebastian Franke, Stephen Hughes, Mohsen Kamandar Dezfouli, Philip Trøst Kristensen, Kurt Busch, Andreas Knorr, and Marten Richter. Quantization of quasinormal modes for open cavities and plasmonic cavity quantum electrodynamics. *Physical Review Letters*, 122(21) :213901, 2019.
- [55] Philip Trøst Kristensen, Rong-Chun Ge, and Stephen Hughes. Normalization of quasinormal modes in leaky optical cavities and plasmonic resonators. *Physical Review A*, 92(5) :053810, 2015.
- [56] Philip Trøst Kristensen, Rong-Chun Ge, and Stephen Hughes. Reply to “comment on ‘normalization of quasinormal modes in leaky optical cavities and plasmonic resonators’”. *Physical Review A*, 96(1) :017802, 2017.
- [57] EA Muljarov and W Langbein. Comment on “normalization of quasinormal modes in leaky optical cavities and plasmonic resonators”. *Physical Review A*, 96(1) :017801, 2017.
- [58] Rémi Colom, Ross McPhedran, Brian Stout, and Nicolas Bonod. Modal expansion of the scattered field : Causality, nondivergence, and nonresonant contribution. *Physical Review B*, 98(8) :085418, 2018.
- [59] Charles H Henry and Rudolf F Kazarinov. Quantum noise in photonics. *Reviews of Modern Physics*, 68(3) :801, 1996.
- [60] T Gruner and D-G Welsch. Correlation of radiation-field ground-state fluctuations in a dispersive and lossy dielectric. *Physical Review A*, 51(4) :3246, 1995.

- [61] Le-Wei Li, Pang-Shyan Kooi, Mook-Seng Leong, and Tat-Soon Yee. Electromagnetic dyadic green's function in spherically multilayered media. *IEEE Transactions on Microwave Theory and Techniques*, 42(12) :2302–2310, 1994.
- [62] D Dzsojtan, B Rousseaux, HR Jauslin, G Colas des Francs, C Couteau, and S Guérin. Mode-selective quantization and multimodal effective models for spherically layered systems. *Physical Review A*, 94(2) :023818, 2016.
- [63] Benjamin Rousseaux. Control for quantum technologies at the nanoscale. 2016.
- [64] Alessia Castellini, Hans Rudolf Jauslin, Benjamin Rousseaux, David Dzsojtan, Gérard Colas des Francs, Antonino Messina, and Stéphane Guérin. Quantum plasmonics with multi-emitters : application to stimulated raman adiabatic passage. *The European Physical Journal D*, 72(12) :223, 2018.
- [65] A Cazé, R Pierrat, and R Carminati. Spatial coherence in complex photonic and plasmonic systems. *Physical review letters*, 110(6) :063903, 2013.
- [66] Ramesh Naidu Annavarapu. Singular value decomposition and the centrality of löwdin orthogonalizations. *American Journal of Computational and Applied Mathematics*, 3(1) :33–35, 2013.
- [67] B Rousseaux, D Dzsojtan, G Colas des Francs, HR Jauslin, C Couteau, and S Guérin. Adiabatic passage mediated by plasmons : A route towards a decoherence-free quantum plasmonic platform. *Physical Review B*, 93(4) :045422, 2016.
- [68] B Rousseaux, D Dzsojtan, G Colas des Francs, HR Jauslin, C Couteau, and S Guérin. Erratum : Adiabatic passage mediated by plasmons : A route towards a decoherence-free quantum plasmonic platform [phys. rev. b 93, 045422 (2016)]. *Physical Review B*, 94(19) :199902, 2016.
- [69] G Colas des Francs, Stephane Derom, Rémi Vincent, Alexandre Bouhelier, and Alain Dereux. Mie plasmons : modes volumes, quality factors, and coupling strengths (purcell factor) to a dipolar emitter. *International Journal of Optics*, 2012, 2012.
- [70] Claude Cohen-Tannoudji, Jacques Dupont-Roc, and Gilbert Grynberg. Atom-photon interactions : basic processes and applications. *Atom-Photon Interactions : Basic Processes and Applications*, by Claude Cohen-Tannoudji, Jacques Dupont-Roc, Gilbert Grynberg, pp. 678. ISBN 0-471-29336-9. Wiley-VCH, March 1998., page 678, 1998.
- [71] PM Visser and G Nienhuis. Solution of quantum master equations in terms of a non-hermitian hamiltonian. *Physical Review A*, 52(6) :4727, 1995.
- [72] Peter L Knight, MA Lauder, and Bill Jack Dalton. Laser-induced continuum structure. *Physics Reports*, 190(1) :1–61, 1990.
- [73] RR Chance, A Prock, and R Silbey. Molecular fluorescence and energy transfer near interfaces. *Advances in chemical physics*, 37 :1–65, 1978.
- [74] LA Blanco and FJ García De Abajo. Spontaneous light emission in complex nanostructures. *Physical review B*, 69(20) :205414, 2004.
- [75] Olivier JF Martin, Christian Girard, and Alain Dereux. Generalized field propagator for electromagnetic scattering and light confinement. *Physical Review Letters*, 74(4) :526, 1995.
- [76] F Kaminski, Vahid Sandoghdar, and M Agio. Finite-difference time-domain modeling of decay rates in the near field of metal nanostructures. *Journal of Computational and Theoretical nanoscience*, 4(3) :635–643, 2007.
- [77] Chen-To Tai. *Dyadic Green functions in electromagnetic theory*. Institute of Electrical & Electronics Engineers (IEEE), 1994.
- [78] Weng Cho Chew. *Waves and fields in inhomogeneous media*. IEEE press, 1995.
- [79] Crispin W Gardiner and Hermann Haken. *Quantum noise*, volume 2. Springer Berlin, 1991.
- [80] Robert H Dicke. Coherence in spontaneous radiation processes. *Physical review*, 93(1) :99, 1954.
- [81] Ilan Shlesinger, Pascale Senellart, Loïc Lanco, and Jean-Jacques Greffet. Tunable bandwidth and nonlinearities in an atom-photon interface with subradiant states. *Physical Review A*, 98(1) :013813, 2018.

- [82] Jonas A Mlynek, Abdufarrukh A Abdumalikov, Christopher Eichler, and Andreas Wallraff. Observation of dicke superradiance for two artificial atoms in a cavity with high decay rate. *Nature communications*, 5 :5186, 2014.
- [83] Michel Gross and Serge Haroche. Superradiance : An essay on the theory of collective spontaneous emission. *Physics reports*, 93(5) :301–396, 1982.
- [84] Mikael Afzelius, Nicolas Gisin, and Hugues De Riedmatten. Quantum memory for photons. *Phys. Today*, 68(12) :42–47, 2015.
- [85] Junki Kim, Daeho Yang, Seung-hoon Oh, and Kyungwon An. Coherent single-atom superradiance. *Science*, 359(6376) :662–666, 2018.
- [86] Vitaliy N Pustovit and Tigran V Shahbazyan. Cooperative emission of light by an ensemble of dipoles near a metal nanoparticle : The plasmonic dicke effect. *Physical review letters*, 102(7) :077401, 2009.
- [87] GV Varada and GS Agarwal. Two-photon resonance induced by the dipole-dipole interaction. *Physical Review A*, 45(9) :6721, 1992.
- [88] Uzma Akram, Z Ficek, and S Swain. Decoherence and coherent population transfer between two coupled systems. *Physical Review A*, 62(1) :013413, 2000.
- [89] Xuan Zhou, Jérémie Wenger, Francesco N Viscomi, Loïc Le Cunff, Jérémie Béal, Serguei Kochtcheev, Xuyong Yang, Gary P Wiederrecht, Gérard Colas des Francs, Anu Singh Bisht, et al. Two-color single hybrid plasmonic nanoemitters with real time switchable dominant emission wavelength. *Nano letters*, 15(11) :7458–7466, 2015.
- [90] Carlos Navarrete-Benlloch. Open systems dynamics : Simulating master equations in the computer. *arXiv preprint arXiv :1504.05266*, 2015.
- [91] Hichem Eleuch, S Guérin, and HR Jauslin. Effects of an environment on a cavity-quantum-electrodynamics system controlled by bichromatic adiabatic passage. *Physical Review A*, 85(1) :013830, 2012.
- [92] 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(2) :027402, 2003.
- [93] Andreas Trügler and Ulrich Hohenester. Strong coupling between a metallic nanoparticle and a single molecule. *Physical Review B*, 77(11) :115403, 2008.
- [94] II Smolyaninov, AV Zayats, A Gungor, and CC Davis. Single-photon tunneling via localized surface plasmons. *Physical review letters*, 88(18) :187402, 2002.
- [95] Filippo Alpeggiani, Stefania D’Agostino, Daniele Sanvitto, and Dario Gerace. Visible quantum plasmonics from metallic nanodimers. *Scientific reports*, 6 :34772, 2016.
- [96] David Dzsojtjan, Anders S Sørensen, and Michael Fleischhauer. Quantum emitters coupled to surface plasmons of a nanowire : A green’s function approach. *Physical Review B*, 82(7) :075427, 2010.
- [97] Javier Galego, Francisco J Garcia-Vidal, and Johannes Feist. Suppressing photochemical reactions with quantized light fields. *Nature Communications*, 7 :13841, 2016.
- [98] Guoqiang Cui and MG Raymer. Emission spectra and quantum efficiency of single-photon sources in the cavity-qed strong-coupling regime. *Physical Review A*, 73(5) :053807, 2006.
- [99] G Dridi, S Guérin, HR Jauslin, D Viennot, and G Jolicard. Adiabatic approximation for quantum dissipative systems : Formulation, topology, and superadiabatic tracking. *Physical Review A*, 82(2) :022109, 2010.
- [100] Jabir Hakami, Ligang Wang, and M Suhail Zubairy. Spectral properties of a strongly coupled quantum-dot–metal-nanoparticle system. *Physical Review A*, 89(5) :053835, 2014.
- [101] Cole Van Vlack, Philip Trøst Kristensen, and Stephen Hughes. Spontaneous emission spectra and quantum light-matter interactions from a strongly coupled quantum dot metal-nanoparticle system. *Physical Review B*, 85(7) :075303, 2012.
- [102] Stephen Hughes and P Yao. Theory of quantum light emission from a strongly-coupled single quantum dot photonic-crystal cavity system. *Optics Express*, 17(5) :3322–3330, 2009.

- [103] Peter B Johnson and R-W_ Christy. Optical constants of the noble metals. *Physical review B*, 6(12) :4370, 1972.
- [104] Craig F Bohren and Donald R Huffman. *Absorption and scattering of light by small particles*. John Wiley & Sons, 2008.
- [105] A Delga, J Feist, J Bravo-Abad, and FJ Garcia-Vidal. Quantum emitters near a metal nanoparticle : strong coupling and quenching. *Physical review letters*, 112(25) :253601, 2014.
- [106] George B Arfken and Hans J Weber. *Mathematical methods for physicists*, 1999.
- [107] Guillaume Laurent, Nicolas Chauvet, Gilles Nogues, Aurelien Drezet, and Guillaume Bachelier. Photon-pair production at the nanoscale with hybrid nonlinear/plasmonic antennas. *arXiv preprint arXiv :1806.08702*, 2018.
- [108] Lin Zschiedrich, Felix Binkowski, Niko Nikolay, Oliver Benson, Günter Kewes, and Sven Burger. Riesz-projection-based theory of light-matter interaction in dispersive nanoresonators. *Physical Review A*, 98(4) :043806, 2018.

Nanoplasmonique quantique : de l'atome habillé à la superradiance

Mots clés : plasmonique quantique, nanosource, couplage fort et faible, superradiance.

Résumé : Le contrôle des émetteurs quantiques (atomes, molécules, boîtes quantiques, etc) et de l'interaction lumière-matière est un enjeu majeur pour la conception des systèmes pour le traitement optique de l'information à l'échelle quantique. Il est possible par exemple de contrôler la dynamique d'un émetteur couplé à un mode de cavité à haut facteur de qualité par le biais de l'électrodynamique quantique en cavité (cQED). Les structures plasmoniques présentent un intérêt de plus en plus important pour le contrôle quantique à l'échelle nanométrique car elles permettent un confinement de la lumière au-delà de la limite de diffraction. Cependant, les applications de la plasmonique quantique apparaissent limitées en pratique à cause de la présence intrinsèque de nombreux modes dissipatifs, ce qui complique la description et l'interprétation de l'interaction et introduit une forte décohérence dans le système. Le sujet de cette thèse porte sur la description quantique du couplage entre un ou plusieurs émetteurs et les plasmons de surfaces localisés d'une nano-particule métallique. Ce travail théorique et numérique repose sur un modèle effectif dédié à la plasmonique quantique faisant le lien avec l'électrodynamique quantique en cavité. L'Hamiltonien effectif sous-jacent est construit sur la décomposition modale de la densité d'état locale de l'émetteur en présence de la nanoparticule impliquant des pseudo-modes plasmoniques discrets avec pertes. L'introduction d'un environnement permet d'établir une équation maîtresse effective où les modes radiatifs sont à l'origine des profils de résonance de type Fano que l'on peut observer lorsque les dimensions de la particule deviennent suffisamment importantes. Ce modèle effectif est utilisé pour décrire l'émission collective d'un ensemble d'émetteurs en régime de couplage faible. Selon la configuration spatiale des émetteurs, nous avons mis en évidence une exaltation (effet Purcell) ou un blocage de l'émission superradiante. Nous étudions également le régime de couplage fort pour lequel le système hybride émetteurs+nano-particule est décrit en représentation de l'atome habillé.

Quantum Nanoplasmonic : from dressed atom picture to superradiance

Keywords : quantum plasmonics, nanosource, strong and weak coupling, superradiance

Abstract : Controlling quantum emitters (atoms, molecules, quantum dots, etc.), light, and its interactions is a key issue for implementing devices for information optical processing at the quantum level. For example, controlling dynamics of emitters coupled to a high-Q cavity can be achieved through cavity quantum electrodynamics (cQED). Plasmonic structures hybrid system are of growing interest in the quantum control at the nanoscale because of their capability to confine light beyond the diffraction limit. However, its application appears notoriously limited in practical situations due to the intrinsic presence of numerous and lossy modes, which complicates the description and the interpretation of the interaction, and introduces strong decoherence in the system. The subject of this thesis concerns the quantum description of the coupling between one or more emitters and localized surface plasmon of a metallic nano-particle. This work is essentially theoretical and numerical and relies on an effective model dedicated to quantum plasmonics and making the link with cavity quantum electrodynamics. The underlying effective Hamiltonian is built via the modal decomposition of the local density of states of the emitter in the presence of the nano-particle. This leads to the definition of plasmonic pseudo-modes including strong losses. Introducing an environment allows to derive an effective master equation where the radiation modes are the source of Fano lineshape of the resonance profiles that occurs when the nano-particle becomes large enough. By means of this effective model we have studied the dynamic of the collective emission of emitters in the weak coupling regime. According to the spatial configuration of the emitters, we observe superradiance enhancement (Purcell effect) or blockade. We also investigate the strong coupling regime for which the hybrid system emitters+nano-particle is described in the dressed atom picture.

