

ОБЗОРЫ АКТУАЛЬНЫХ ПРОБЛЕМ

**Квантовая оптика квантовых излучателей
в ближнем поле наночастицы**

Ю.В. Владимирова, В.Н. Задков

Обзор посвящён изучению эффектов квантовой оптики квантовых излучателей (КИ) в ближнем поле наночастиц. Рассмотрены механизмы модификации скоростей радиационного и нерадиационного распада в простейшей модели двухуровневого КИ, расположенного вблизи плазмонной наночастицы (НЧ), а также проанализировано распределение интенсивности и поляризации ближнего поля вокруг НЧ. Это распределение имеет сложную структуру, которая существенным образом зависит от поляризации внешнего поля излучения и параметров плазмонных резонансов НЧ. Также проанализированы эффекты квантовой оптики в системе (НЧ + КИ) + внешнее лазерное поле: модификация спектра резонансной флуоресценции КИ в ближнем поле, явления группировки/антигруппировки и квантовой статистики фотонов в спектре, формирование сжатых состояний света, квантовые запутанные состояния в таких системах.

Ключевые слова: нанофотоника, наноплазмоника,nanoструктура, квантовый излучатель, двухуровневая система, квантовая оптика, резонансная флуоресценция, антигруппировка и квантовая статистика фотонов, сжатые состояния, квантовые запутанные состояния

PACS numbers: 42.50.-p, 42.79.-e, 78.67.-n

DOI: <https://doi.org/10.3367/UFNr.2021.02.038944>

Содержание

1. Введение (267).
2. Ближнее поле наночастицы во внешнем электромагнитном поле. Поляризация ближнего поля наночастицы (269).
3. Спонтанное испускание квантового излучателя в присутствии наночастицы (271).
 - 3.1. Классический подход.
 - 3.2. Квантовый подход.
 - 3.3. Исследования квантового излучателя вблизи наночастицы и на подложках.
4. Квантовая оптика квантового излучателя в ближнем поле наночастицы (278).
 - 4.1. Спектр резонансной флуоресценции квантового излучателя.
 - 4.2. Статистика фотонов спектра резонансной флуоресценции квантового излучателя.
 - 4.3. Антигруппировка фотонов резонансной флуоресценции квантового излучателя.
 - 4.4. Формирование сжатых состояний света.
 - 4.5. Генерация запутанных квантовых состояний.

5. Заключение (290).
- Список литературы (291).

1. Введение

В настоящем обзоре рассматриваются эффекты квантовой оптики единичных квантовых излучателей (КИ) (атом, молекула, квантовая точка, NV-центр и т.д.) в ближнем поле наночастицы (НЧ). Очертим круг вопросов, которые будут рассмотрены, поскольку в научной литературе в последнее время широко используется термин "квантовая плазмоника", под которым понимается новая область исследований в нанофотонике — комбинация наноплазмоники с квантовой оптикой [1]. При этом рассматривается взаимодействие КИ не только с локализованными внутри НЧ плазмонами, но и с поверхностными плазмонными волнами, когда их квантовые свойства тоже важны. В данном обзоре мы в первую очередь рассматриваем такие эффекты, как неклассическое поведение света в резонансной флуоресценции единичного атома [2], проявляющееся как суперпуассоновское распределение статистики фотонов [3], явление антигруппировки рассеянных фотонов [4] при счёте задержанных совпадений, а также неклассическое поведение света в распределении фотоотсчётов и в спектре флуктуации интенсивности.

Рассмотрение указанных и других квантовых эффектов, возникающих в системах КИ + НЧ + внешнее поле, особенно актуально в настоящее время ввиду бурного развития экспериментальных исследований в области нанофотоники, которая, в частности, демонстрирует надёжные источники неклассического света от единичных

Ю.В. Владимирова^(1,2,a), В.Н. Задков^(2,3,b)

⁽¹⁾ Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова, физический факультет, Центр квантовых технологий, Ленинские горы 1, стр. 35, 119991 Москва, Российской Федерации

⁽²⁾ Национальный исследовательский университет
"Высшая школа экономики", факультет физики,
ул. Старая Басманная 21/4, стр. 5, 105066 Москва,
Российская Федерация

⁽³⁾ Институт спектроскопии РАН, ул. Физическая 5, 108840 Троицк,
Москва, Российской Федерации

E-mail: ^(a) yu.vladimirova@physics.msu.ru, ^(b) zadkov@isan.troitsk.ru

Статья поступила 19 августа 2020 г.,
после доработки 13 января 2021 г.

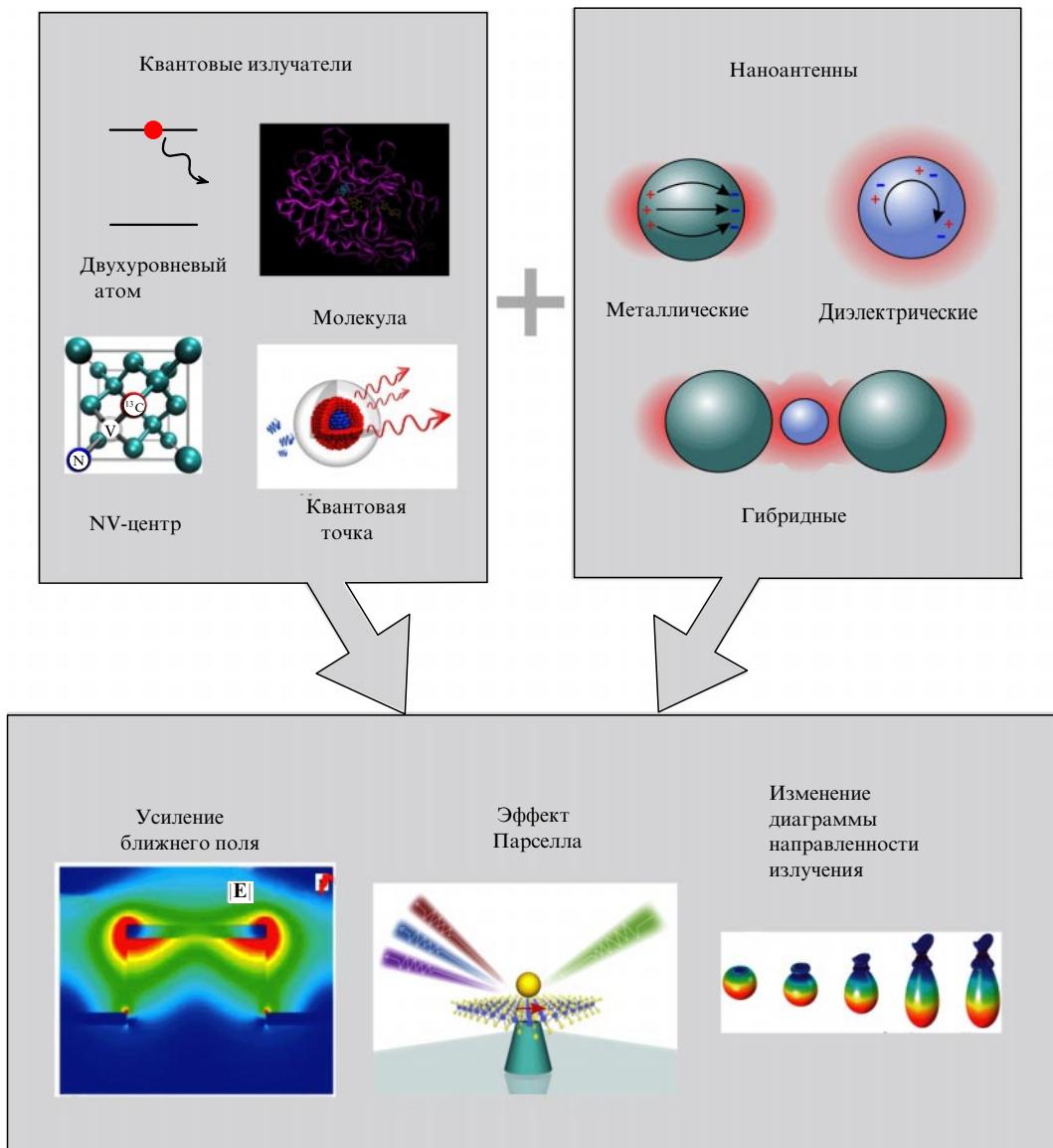


Рис. 1. (В цвете онлайн.) Свойства наноантенн по управлению электромагнитным полем на наномасштабе и изменение параметров спонтанного излучения КИ в ближнем поле наноантенны.

КИ, в том числе встроенных в различныеnanoструктуры [5]. Мы в первую очередь рассматриваем и используем следующие уникальные свойства НЧ и nanoструктур (рис. 1):

1. Эффективное преобразование электромагнитного излучения, взаимодействующего с НЧ, в ближнее электромагнитное поле, обеспечивающее при этом многочленное увеличение интенсивности поля в субволновых областях вокруг НЧ [6–8].

2. Управление параметрами спонтанного излучения КИ в ближнем поле НЧ (эффект Парселла) [9].

3. Способность концентрировать и перенаправлять падающее излучение в заданную область пространства — управление диаграммой направленности излучения [10].

Наноструктуры с такими свойствами, часто называемые *оптическими наноантеннами*, обладают большим потенциалом в различных областях исследований: в задачах оптической обработки информации [11–13], создании однофотонных источников [14], в фотовольтаике

[15–19], в медицине при терапии онкологических заболеваний [20–24], в задачах микроскопии со сверхразрешением [25, 26] и многих других. Оптическим антеннам посвящено большое число обзоров и книг [5, 27–35], в нашем обзоре мы лишь кратко остановимся на основных свойствах таких антенн, поскольку они важны при описании взаимодействия КИ с НЧ.

Оптические наноантенны можно разделить на три группы: металлические, диэлектрические и гибридные (металло-диэлектрические). Каждая группа имеет свои преимущества и недостатки.

Металлические наноантенны, называемые плазмонными, позволяют локализовать возбуждающее электромагнитное поле на масштабах порядка 10 нм в ближней зоне благодаря возбуждению в них плазмонного резонанса. Традиционно такие антенны изготавливают из химически стойких благородных металлов, например золота или серебра, имеющих хотя и наименьшие среди металлов, но довольно высокие диссипативные потери в видимом диапазоне [36, 37]. Важным является не только

материал, из которого изготовлена наноантенна, но и её геометрия, существенно влияющая на усиление ближнего поля и фактор Парселла. Например, в работе [38] показано, что раствор с золотыми наносферами диаметром 35 нм не даёт флуоресценции, в то время как раствор с золотыми наностержнями того же объёма приводит к усилению флуоресценции на 6–7 порядков. Способность металлических наноантенн усиливать ближнее поле на несколько порядков играет важную роль в термоплазмонике и медицине [39], однако их применение в системах, требующих эффективной передачи электромагнитной энергии, очевидно, малоэффективно.

Преодолеть ограничения, свойственные металлическим наноантенным, призваны *диэлектрические наноантенны*, которые изготавливаются из материалов с высоким коэффициентом преломления и низким коэффициентом поглощения в видимом диапазоне (например, Si) [40]. Внутри диэлектрических наноструктур возбуждаются как электрические, так и магнитные резонансы Ми [41–43], позволяющие наноантеннам взаимодействовать с электрической и магнитной компонентами электромагнитного поля в равной степени, тогда как плазменные антенны взаимодействуют только с электрической составляющей. Однако усиление ближнего поля диэлектрических антенн заметно слабее, чем у плазменных, и, как следствие, меньше фактор Парселла.

Перечисленные достоинства и недостатки металлических и диэлектрических наноантенн инициировали создание так называемых *гибридных наноантенн*, сочетающих в себе преимущества металлических и диэлектрических [29]. Разработки таких наноструктур активно ведутся в последнее время. Исследования показывают, что гибридные наноантенны обладают многими интересными с точки зрения практического применения свойствами, включая низкие тепловые потери, оптический и магнитный резонансные отклики, сильные нелинейно-оптические свойства и возможность управления диаграммой направленности излучения.

Наличие наноантенн любого типа вблизи КИ влияет на его свойства: интенсивность излучения, квантовый выход, спектр резонансной флуоресценции, статистику фотонов из спектра резонансной флуоресценции, а также приводит к антигруппировке фотонов и сжатию излучения, к генерации квантовых запутанных состояний. Все перечисленные свойства зависят от напряжённости и поляризации электромагнитного поля, скорости спонтанной релаксации и частоты перехода КИ [44].

В разделе 2 мы рассмотрим теоретические подходы к исследованию распределения напряжённости и поляризации ближнего поля плазмонной НЧ.

В разделе 3 описываются эффекты взаимодействия единичного КИ с наноантенной; рассмотрены спонтанная релаксация квантового излучателя вблизи наноантенны в рамках классического и квантового подходов, возможности управления параметрами КИ посредством изменения параметров НЧ, гашение флуоресценции КИ вблизи наноантенны. Обсуждаются также разные типы наноантенн, в том числе отдельное внимание удалено перспективным гибридным наноантенным.

Раздел 4 посвящён эффектам квантовой оптики единичных КИ в ближнем поле НЧ во внешнем электромагнитном поле. Рассмотрены генерация спектра резонансной флуоресценции КИ, явление антигруппировки фотонов, формирование сжатых состояний света, субпуассон-

новская статистика счёта фотонов из спектра резонансной флуоресценции и генерация квантовых запутанных состояний.

В заключении просуммированы основные описанные эффекты квантовой оптики единичных КИ в ближнем поле НЧ и обсуждаются вопросы их применения.

2. Ближнее поле наночастицы во внешнем электромагнитном поле. Поляризация ближнего поля наночастицы

Наиболее простая геометрическая форма НЧ — сферическая. Именно с таких НЧ мы начнём наше рассмотрение, тем более что для сферической геометрии возможно аналитическое решение соответствующей задачи дифракции, впервые полученное Густавом Ми [41] в 1908 г. Теория Ми в применении к сферическим НЧ подробно рассмотрена в литературе [29, 34, 45]. Так, в [45] детально рассмотрена задача рассеяния плоской волны на сферической частице, в [34] особое внимание уделено случаю возбуждения сферических частиц точечными КИ (атомами, молекулами, квантовыми точками, NV-центрами). В работе [46] также решена задача для КИ, находящегося внутри сферической НЧ, в которую внедрены, например, молекулы-флюорофоры.

Дальнейшее развитие теории Ми позволяет анализировать оптические свойства НЧ сфероидальной геометрии (наностержни, наноиглы, нанодиски). Эти задачи уже гораздо сложнее, поскольку требуют вычисления сфероидальных функций, для чего специально разрабатывались эффективные алгоритмы [47, 48]. В случае сложных геометрий единственным способом нахождения решения является численное решение уравнений Максвелла, и для этого в настоящее время разработан ряд эффективных численных методов.

Непосредственное решение уравнений Максвелла, однако, не всегда является оптимальным. Так, например, численное решение уравнений Максвелла для рассеяния электромагнитного поля НЧ из одного материала не может быть непосредственно использовано для определения плазменных свойств НЧ такой же формы, но из другого материала. Нахождение точных значений плазменных частот и других характеристик плазмонов при таком методе решения является сложной задачей. Вместо этого удобно использовать так называемый ε -метод, в котором основную роль играют не резонансные частоты, а соответствующие им значения диэлектрической проницаемости.

Этот метод, разработанный в [49, 50], позволяет найти ближнее поле НЧ из её плазмонного спектра, т.е. собственных функций \mathbf{e}_n и \mathbf{h}_n , удовлетворяющих уравнениям Максвелла

$$\begin{aligned} \text{rot } \mathbf{h}_n + ik\varepsilon_n \mathbf{e}_n &= 0, \\ \text{rot } \mathbf{e}_n - ik\mathbf{h}_n &= 0, \end{aligned} \quad (1)$$

условиям непрерывности тангенциальных компонент на поверхности частицы и условиям излучения Зоммерфельда. Электрическое поле вблизи НЧ произвольной формы определяется как

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega) = \mathbf{E}_0(\mathbf{r}) + \sum_n \mathbf{e}_n \frac{\varepsilon(\omega) - \varepsilon_{\text{env}}}{\varepsilon_n - \varepsilon(\omega)} \frac{\int_V (\mathbf{e}_n, \mathbf{E}_0) dV}{\int_V \mathbf{e}_n^2 dV}, \quad (2)$$

где $\varepsilon(\omega)$ описывает зависимость диэлектрической проницаемости конкретного материала, из которого сделана НЧ, от частоты, \mathbf{e}_n и ε_n — мода плазмонных колебаний и собственное значение, соответствующее данной моде, ε_{env} — диэлектрическая проницаемость окружающей среды, \mathbf{E}_0 и V — поле в отсутствие НЧ и её объём. Аналогично выражается и $\mathbf{H}(\mathbf{r}, \omega)$, с точностью до замены $\mathbf{e}_n \rightarrow \mathbf{h}_n$, $\mathbf{E}_0 \rightarrow \mathbf{H}_0$. Выражение (2) является точным и описывает НЧ любого размера, поскольку эффект запаздывания в нём полностью учтён.

В задачах, рассматриваемых в нашем обзоре, речь идёт об оптических полях видимого диапазона, т.е. когда длина волны внешнего поля много больше линейных размеров частицы, $\lambda \gg l$. Тогда для определения ближних полей \mathbf{e}_n вполне применимо квазистатическое приближение. В этом случае поле вблизи НЧ, согласно (2), описывается формулой

$$\mathbf{E} = \mathbf{E}_0 + \sum_n \frac{\varepsilon(\omega) - \varepsilon_{\text{env}}}{\varepsilon_n - \varepsilon(\omega)} \frac{\int_V (-\nabla \varphi_n, \mathbf{E}_0) dV}{\int_V (\nabla \varphi_n)^2 dV} (-\nabla \varphi_n), \quad (3)$$

где функции φ_n — потенциалы соответствующих плазмонных мод \mathbf{e}_n .

Поляризация ближнего поля наночастицы. В задачах нанооптики и наноплазмоники, говоря о ближнем поле, обычно интересуются только его интенсивностью, в связи с тем что она может быть измерена экспериментально. Однако не менее важной характеристикой поля является его поляризация, и взаимодействие КИ с полем принципиальным образом зависит и от поляризации последнего.

Так, в работах [51, 52] подробно исследована поляризация ближнего поля металлической и диэлектрической НЧ сферической и сфероидальной геометрий. Следуя этим работам, рассмотрим поляризацию ближнего поля плазмонной НЧ. Пусть поле в точке \mathbf{r} имеет вид

$$\begin{aligned} E_x(\mathbf{r}, t) &= A_x(\mathbf{r}) \cos [\omega t + \phi_x(\mathbf{r})], \\ E_y(\mathbf{r}, t) &= A_y(\mathbf{r}) \cos [\omega t + \phi_y(\mathbf{r})], \\ E_z(\mathbf{r}, t) &= A_z(\mathbf{r}) \cos [\omega t + \phi_z(\mathbf{r})], \end{aligned} \quad (4)$$

где $A_i(\mathbf{r})$ ($i = x, y, z$) — действительная амплитуда i -й компоненты ближнего поля \mathbf{E} в формуле (3), $\phi_x(\mathbf{r})$, $\phi_y(\mathbf{r})$ и $\phi_z(\mathbf{r})$ — фазы проекций поля на оси координат. Исключив временнюю зависимость, можно показать, что кривая, описываемая вектором \mathbf{E} за период колебаний поля, лежит в плоскости, ориентация которой определяется амплитудами A_i и сдвигами фаз ϕ_x , ϕ_y , ϕ_z . Так как все компоненты поля \mathbf{E} изменяются с одной и той же частотой, вектор \mathbf{E} описывает в плоскости колебаний эллипс, полуоси которого равны минимальному, E_{\min} , и максимальному, E_{\max} , значениям амплитуды поля в данной точке пространства. Если минимальное значение амплитуды поля равно нулю, то поляризация линейная, а если $E_{\min} = E_{\max}$, то — циркулярная.

Для определения поляризации ближнего поля в каждой точке, введём степень поляризации

$$P = \frac{I_{\max} - I_{\min}}{I_{\max} + I_{\min}}, \quad (5)$$

где I_{\max} , I_{\min} — максимальное и минимальное значения модуля вектора Умова–Пойнтинга в данной точке на периоде колебаний электромагнитной волны. Эта величина показывает, насколько поляризация поля близка к

линейной. В случае линейной поляризации $P = 1$, в случае циркулярной $P = 0$, при эллиптической поляризации P принимает значения в диапазоне от 0 до 1.

Величина P принципиально отличается от степени поляризации, которая характеризует поляризованность поля и определяется в случае поля плоской волны как

$$\tilde{P} = \frac{\sqrt{S_1^2 + S_2^2 + S_3^2}}{I}, \quad (6)$$

где S_1 , S_2 и S_3 — параметры Стокса. Определив I_{\max} , I_{\min} в заданной точке \mathbf{r} через компоненты поля, можно легко вычислить степень поляризации (5). Однако следует отметить, что она не предоставляет полной информации о поляризации ближнего поля, так как не характеризует направление вращения вектора \mathbf{E} . Для определения направления вращения удобно использовать параметры Стокса. Однако, поскольку ближнее поле в общем случае имеет три компоненты, для описания состояния поляризации в терминах параметров Стокса необходимо использовать так называемые обобщённые параметры Стокса [53]. В трёхмерном случае число параметров Стокса равно девяти, три из них играют роль, аналогичную роли параметра S_3 , для каждой из трёх плоскостей, xy , yz и xz , и определяют преобладание правой циркулярно поляризованной компоненты поля над левой. Выражения для этих параметров имеют вид

$$\begin{aligned} S_{3xy} &= i[\langle E_x^*(\mathbf{r}, \omega) E_y(\mathbf{r}, \omega) \rangle - \langle E_x(\mathbf{r}, \omega) E_y^*(\mathbf{r}, \omega) \rangle], \\ S_{3xz} &= i[\langle E_x^*(\mathbf{r}, \omega) E_z(\mathbf{r}, \omega) \rangle - \langle E_x(\mathbf{r}, \omega) E_z^*(\mathbf{r}, \omega) \rangle], \\ S_{3yz} &= i[\langle E_y^*(\mathbf{r}, \omega) E_z(\mathbf{r}, \omega) \rangle - \langle E_y(\mathbf{r}, \omega) E_z^*(\mathbf{r}, \omega) \rangle], \end{aligned} \quad (7)$$

где $E_i = A_i \exp(i\omega t)$, угловые скобки обозначают усреднение по времени. В нашем случае поля стационарны, поэтому операцию усреднения можно опустить. Параметр S_3 принимает отрицательные значения в случае преобладания левой циркулярной поляризации и положительные значения в случае преобладания правой.

В терминах трёхмерных параметров Стокса степень поляризации можно записать в виде

$$P = \sqrt{1 - \left(\frac{S_{3xy}}{I} \right)^2 - \left(\frac{S_{3xz}}{I} \right)^2 - \left(\frac{S_{3yz}}{I} \right)^2}, \quad (8)$$

где для удобства параметры Стокса нормированы на интенсивность поля в точке наблюдения.

В работе [51] исследована поляризация ближнего поля сфероидальной серебряной НЧ, возбуждаемой плоской волной с линейной, циркулярной и эллиптической поляризацией. В случае взаимодействия НЧ с плоской электромагнитной волной в НЧ возбуждаются только дипольные моды.

Если внешнее поле линейно поляризовано вдоль оси z , то возбуждается только одна плазмонная мода с $n = 1$, $m = 0$. На рисунке 2 показано распределение степени поляризации ближнего поля в случае плазмонного резонанса для различных поляризаций плоской волны ($k \parallel z$): линейной (рис. 2a), эллиптической (рис. 2b), левой круговой (рис. 2c), а также для случая взаимодействия НЧ с одномодовым гауссовым пучком (рис. 2d). В последнем случае в поле пучка возбуждаются плазмонные моды высоких порядков, что существенно усложняет картину поляризации ближнего поля.

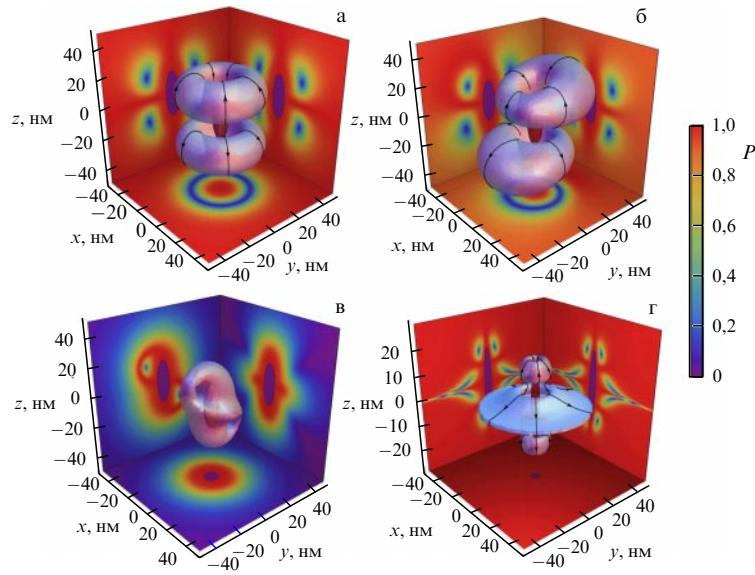


Рис. 2. (В цвете онлайн.) Распределение степени поляризации ближнего поля в случае плазмонного резонанса $\alpha = \alpha_{\text{res}}$. Трёхмерная поверхность соответствует значению $P = 0.8$. Двумерные распределения описывают сечения в трёх плоскостях: xz , yz , $z = 15$ нм (а, б) и xy (в, г). Красный цвет соответствует линейной поляризации ($P = 1$), а фиолетовый — циркулярной ($P = 0$). Направление вращения вектора E показано стрелками.

Таким образом, картина распределения степени поляризации существенно зависит от поляризации внешнего поля и имеет сложную структуру. Вблизи поверхности НЧ возникают области с поляризацией, противоположной поляризации внешнего поля: в случае линейно поляризованного внешнего поля распределение степени поляризации имеет вид двух симметричных торов, в центре которых поляризация является круговой, и наоборот, в случае, когда поляризация внешнего поля является циркулярной, распределение степени поляризации имеет вид сложной фигуры, в центре которой, однако, поляризация линейна. В случае линейно поляризованного внешнего поля области изменения поляризации уменьшаются и смещаются к остриямnanoантенны при $\alpha < \alpha_{\text{res}}$, где α — аспектное отношение, равное отношению меньшей полуоси сфероида к большей, и к экватору сфероида при $\alpha > \alpha_{\text{res}}$. Важно отметить, что положением областей можно управлять, меняя направление падения внешнего излучения.

В работе [54] поляризация ближнего поля в той же системе исследовалась с помощью параметров изотропии L^T и C^T . Эти параметры характеризуют распределение эллипсов вблизи особых точек. Численный алгоритм, который отслеживает линии L^T и C^T , позволяет визуализировать линии поляризационных сингулярностей вблизи наносфера.

Важно отметить, что большое число теоретических исследований посвящено изучению свойств НЧ в свободном пространстве, хотя в реальных экспериментах НЧ находятся в окружении других объектов, например других НЧ или подложки, на которую они нанесены. В некоторых случаях влиянием окружения можно пренебречь, однако такое упрощение не всегда правомерно. Влияние подложки может быть довольно существенным, например, при создании ближнепольных сенсоров, а также в популярном методе комбинированного (рамановского) рассеяния на поверхности (Surface-Enhanced Raman Scattering, SERS) [55].

Так, в работе [56] исследовано распределение поляризации ближнего поля вблизи серебряного наносфера на кварцевой подложке. Так же как и при отсутствии подложки, поляризация ближнего поля вблизи поверхности сфероида меняется на противоположную. Однако если для НЧ в свободном пространстве распределение степени поляризации симметрично относительно и большой, и малой осей сфероида, то при наличии подложки области изменения поляризации в подложке наблюдаются только для длин волн вблизи плазмонного резонанса и размер этих областей внутри подложки уменьшается. Так, при точном резонансе размер области противоположной поляризации внутри подложки уменьшается примерно вдвое по сравнению с размером области над подложкой. Вдали от плазмонного резонанса в подложке области с противоположной поляризацией отсутствуют.

Исследования поляризации ближнего поля проводились и для наносферы из диэлектрика с высоким показателем преломления (Si) как в свободном пространстве, так и на кварцевой подложке [57, 58]. В случае диэлектрической НЧ области изменения поляризации наиболее ярко выражены на длинах волн, отвечающих электрическому и магнитному дипольным и квадрупольным резонансам. Как и в случае металлической НЧ, вблизи поверхности НЧ образуются области изменения поляризации на противоположную, однако форма этих областей изменяется. В работе [59] поляризация ближнего поля для наносферы из диэлектрика с высоким показателем преломления (Si) в свободном пространстве исследовалась с помощью параметров изотропии L^T и C^T .

3. Спонтанное испускание квантового излучателя в присутствии наночастицы

После изобретения лазера в 1960 г. квантовая электроника интенсивно развивалась в направлении применения

контролируемых стимулированных квантовых процессов для совершенствования всех характеристик лазерного излучения. И только спустя 40 лет благодаря развитию нанотехнологий начал активно исследоваться вопрос управления элементарным процессом спонтанного испускания КИ (атома, молекулы, квантовой точки). Управление этим процессом является основой для широкого спектра применений, таких как светоизоды на гетероструктурах [60], аналитическая химия, спектроскопия, сенсоры [61] и др.

Флуоресцентный КИ, взаимодействующий с веществом на наномасштабе, является идеальным выбором в качестве метки во многих технологиях, таких как секвенирование генов [62, 63], нейронное картирование [64], мониторинг безопасности пищевых продуктов и лекарств [65] и других [66]. В то же время спонтанное излучение единичного КИ в свободном пространстве слишком слабо, чтобы его можно было обнаружить при низкой концентрации КИ. Кроме того, поскольку диаграмма направленности излучения такого КИ не имеет выделенного направления, возникает проблема эффективной регистрации сигнала. Для преодоления этих недостатков необходимы методы повышения интенсивности флуоресценции и управления диаграммой направленности такого излучения.

Впервые вопрос об управлении спонтанным излучением КИ был поставлен Парселлом [9], рассмотревшим повышение вероятности спонтанного испускания атома в резонаторе, частота единственной моды которого настроена на частоту перехода атома. В работе [9] Парселл показал, что скорость спонтанной релаксации магнитного диполя в резонаторе может увеличиваться по сравнению со скоростью релаксации в свободном пространстве, т.е. окружение атома существенно изменяет его излучательные свойства. В качестве наноокружения могут выступать и нанорезонаторы, как рассматривал Парселл, и наноантенны. Важным преимуществом антенн перед резонаторами является их широкая полоса частот.

Согласно формуле Парселла для одномодового резонатора, скорость излучения флуорофора в диэлектрическом резонаторе увеличивается по сравнению со скоростью излучения в вакууме с коэффициентом

$$F = \frac{3}{4\pi^2} \lambda^3 \frac{Q}{V}, \quad (9)$$

где Q — добротность моды резонатора, V/λ^3 — объём моды в кубических длинах волн.

Микрополости могут поддерживать моды крайне малого объёма, что прямо приводит к требованию больших Q ($Q > 10^4$). Таким образом, чем больший фактор Парселла для нанорезонатора мы хотим получить, тем меньше будет ширина линии и тем сложнее процесс настройки резонатора для конкретного КИ. Кроме того, большая величина Q подразумевает медленный (пико-секундный или наносекундный) отклик, который в итоге может помешать сверхбыстрому переключению. Наноантенны, в противовес нанорезонаторам, — это широкополосные открытые системы с типичным значением $Q = 3-30$. Увеличение скорости излучения может происходить по всему спектру КИ, например органического красителя или квантовой точки. Таким образом, ввиду необходимости получить малый объём моды требуется хранить электромагнитную энергию в материальном

резонансе. Поэтому однофотонные наноантенны изготавливают из плазмонных или поляритонных, а в последнее время благодаря развитию технологий и из гибридных (металло-диэлектрических) материалов.

Заметим, что величины Q и V в (9) не определены для плазмоники [67, 68]; если в качестве собственного значения использовать частоту, то тогда собственные функции неограниченно возрастают на бесконечности, что и приводит к проблемам при численном решении уравнений в частных производных. В данном обзоре используется другой подход (см. раздел 2), в котором собственным значением является диэлектрическая проницаемость, собственные функции убывают на бесконечности и все величины хорошо определены для любых систем.

Прежде чем перейти к обсуждению модификации скорости спонтанной релаксации вблизиnanoобъектов, отметим, что в теории взаимодействия атома и поля есть два чётко выраженных режима: сильной и слабой связи. Различие между режимами определяется константой атомно-полевой связи

$$\varkappa = d \sqrt{\frac{\hbar \omega_0}{2 \varepsilon_0 \varepsilon_r V}}, \quad (10)$$

где ω_0 — частота атомного перехода, d — его дипольный матричный элемент, ε_0 — диэлектрическая проницаемость вакуума, ε_r — относительная диэлектрическая проницаемость, V — объём резонатора. Режим слабой связи определяется условием $\varkappa \ll \gamma$, режим сильной связи соответствует условию $\varkappa \gg \gamma$, где γ — скорость релаксации фотона в резонаторе.

В режиме слабой связи, $\varkappa \ll \gamma$, собственные состояния связанный системы совпадают с собственными состояниями несвязанной системы и скорость спонтанного излучения может значительно измениться вследствие изменения локальной плотности состояний (см. раздел 3.2). В режиме сильной связи, $\varkappa \gg \gamma$, взаимодействие является достаточно сильным, так что изменяется не только скорость спонтанного излучения, но и уровни энергии системы. Возбуждённые КИ и электромагнитные моды в резонаторе обратимо и когерентно обмениваются энергией с большой скоростью \varkappa . Уровни энергии гибридной системы сильно отличаются от уровней КИ и электрического поля в отдельности. Это приводит к расщеплению спектрального отклика КИ, известному как расщепление Раби [69].

В режиме слабой связи классическая теория и расчёты в рамках квантовой электродинамики (КЭД) приводят к одинаковому результату для модификации скорости спонтанной излучательной релаксации. В режиме сильной связи спонтанный спад атома, как показано в [70–73], также хорошо описывается в рамках классического подхода. При этом в терминах классической теории модификация спонтанной релаксации обусловлена рассеянием атомных полей на окружении, а в рамках КЭД релаксация частично обусловлена флуктуацией вакуумного поля, которое в свою очередь является функцией окружения. Рассмотрим классический и квантовый подходы к описанию спонтанной релаксации КИ в присутствии НЧ.

3.1. Классический подход

Рассмотрим спонтанную релаксацию в рамках классического подхода [74], моделируя КИ свободным диполем,

осциллирующим по гармоническому закону. Уравнение движения диполя в свободном пространстве имеет вид

$$\frac{d^2\mathbf{d}(t)}{dt^2} + \gamma_0 \frac{d\mathbf{d}(t)}{dt} + \omega_0^2 \mathbf{d}(t) = 0, \quad (11)$$

где $\mathbf{d} = \Delta\mathbf{r}$ — электрический дипольный момент осциллятора, ω_0 — его собственная частота. Скорость спонтанного распада в вакууме γ_0 определяется как

$$\gamma_0 = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{2e^2\omega_0^2}{3mc^3}. \quad (12)$$

Если осциллятор расположен вблизи НЧ, то на него действует дополнительное, отсутствующее в случае осциллятора в однородном пространстве, поле $\mathbf{E}_s(\mathbf{r}_0, t)$ и уравнение движения принимает вид

$$\frac{d^2\mathbf{d}(t)}{dt^2} + \gamma_0 \frac{d\mathbf{d}(t)}{dt} + \omega_0^2 \mathbf{d}(t) = \frac{e^2}{m} \mathbf{E}_s(\mathbf{r}_0, t). \quad (13)$$

Для нахождения отражённого поля $\mathbf{E}_s(\mathbf{r}_0)$ необходимо решить полную систему уравнений Максвелла, в которой источником заряда и тока является дипольный момент осциллятора. Выражение для изменения скорости спонтанных распадов, называемое *фактором Парселя*, выглядит как

$$\frac{\gamma}{\gamma_0} = 1 + \frac{6\pi\epsilon_0}{|d_0|^2} \frac{1}{k^3} \text{Im} [\mathbf{d}_0 \mathbf{E}_s(\mathbf{r}_0, \omega_0)], \quad (14)$$

где \mathbf{d}_0 — дипольный момент осциллятора в вакууме. Полученное выражение применимо также в случае комплексной диэлектрической проницаемости, т.е. в случае вещества с потерями.

Изменение скорости спонтанного излучения КИ в присутствии НЧ впервые было исследовано в работах [75, 76], где показано, что радиационная часть скорости распада имеет вид

$$\frac{\gamma}{\gamma_0} = \frac{|\mathbf{d}_{\text{tot}}|^2}{|\mathbf{d}_0|^2}, \quad (15)$$

где \mathbf{d}_{tot} — полный дипольный момент системы КИ + НЧ. Эта формула применима в случае любых НЧ, в том числе НЧ с потерями.

3.2. Квантовый подход

В рамках КЭД для описания спонтанной релаксации рассматривается взаимодействие КИ с континуумом состояний. В простейшем случае будем описывать КИ двухуровневой системой с основным состоянием $|g\rangle$ и возбуждённым состоянием $|e\rangle$, ω_0 — частота перехода, \mathbf{d} — дипольный момент перехода. Скорость спонтанной релаксации, согласно золотому правилу Ферми, определяется как

$$\gamma = \frac{2\pi}{\hbar} \sum_f |\langle f | \hat{H}_I | i \rangle|^2 \rho_{\mathbf{d}}(\mathbf{r}_0, \omega_0), \quad (16)$$

где $\hat{H}_I = -\hat{\mathbf{d}}\hat{\mathbf{E}}$ — гамильтониан взаимодействия в дипольном приближении. Здесь рассматриваются комбинированные состояния поле + система и переходы из начального возбуждённого состояния $|i\rangle = |e, \{0\}\rangle$ с энер-

гией E_i в набор конечных состояний $|f\rangle = |g, \{1_{\omega_k}\}\rangle$ с одинаковой энергией E_f . Конечные состояния различаются лишь модой k поля излучения. Число отдельных однофотонных состояний определяется частичной локальной плотностью состояний $\rho_{\mathbf{d}}(\mathbf{r}_0, \omega_0)$, где \mathbf{r}_0 определяет положение двухуровневой системы.

Выражение для спонтанной релаксации в терминах функции Грина, подробный вывод которого читатель найдёт в книге [32], имеет вид

$$\begin{aligned} \gamma &= \frac{2\omega_0}{3\hbar\epsilon_0 c^2} |\mathbf{d}|^2 \rho_{\mathbf{d}}(\mathbf{r}_0, \omega_0), \\ \rho_{\mathbf{d}}(\mathbf{r}_0, \omega_0) &= \frac{6\omega_0}{\pi c^2} \mathbf{n} \text{Im} \mathbf{G}(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_0, \omega_0) \mathbf{n}, \end{aligned} \quad (17)$$

здесь дипольный момент представлен произведением $\mathbf{d} = d\mathbf{n}$, где \mathbf{n} — единичный вектор в направлении \mathbf{d} . Данная формула позволяет рассчитать скорость спонтанной релаксации двухуровневой квантовой системы для замкнутых резонаторов без потерь, где можно корректно ввести понятие моды и её собственной частоты, если известна функция Грина для окружающей среды. Скорость спонтанной релаксации выражена в терминах частичной локальной плотности состояний ρ , соответствующей числу мод в расчёте на единицу объёма и частоты, в точечной квантовой системе с координатой \mathbf{r}_0 , в которой может быть испущен фотон с энергией $\hbar\omega_0$ в течение процесса спонтанной релаксации. В англоязычной литературе величину $\rho_{\mathbf{d}}$ называют PLDOS (Partial Local Density of Optical States).

Отметим, что выражение (17) для полной скорости релаксации КИ справедливо при наличии произвольных потерь в окружающей среде как в классической, так и квантовой постановках задачи [77, 78]. В случае НЧ без потерь квантово-механический подход обычно позволяет легче получить результат, поскольку он сразу выражается в виде довольно простого разложения по решениям однородных уравнений Максвелла. В работах [79–81] процедура квантования электромагнитных полей обобщена для случая диспергирующих и поглощающих сред. В рамках этой теории показана эквивалентность классических и квантовых результатов для скоростей спонтанных переходов в первом порядке теории возмущений.

В случае, когда окружающая среда однородна и изотропна, скорость спонтанной релаксации (17) усредняется по всем возможным ориентациям и частичная локальная плотность состояний $\rho_{\mathbf{d}}$ становится идентичной полной локальной плотности состояний ρ (Local Density of Optical States — LDOS), определённой в виде

$$\rho(\mathbf{r}_0, \omega_0) = \frac{2\omega_0}{\pi c^2} \text{Im} (\text{Tr} (\mathbf{G}(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_0, \omega_0))). \quad (18)$$

Экспериментальные работы по изучению влияния наноокружения на процесс спонтанной релаксации были начаты ещё в 1960-е годы. Первая экспериментальная проверка влияния границы раздела сред на спонтанную релаксацию молекул была осуществлена в 1966 г. в работе [82], а затем спустя 17 лет — в работе [83]. Важно отметить, что наноокружение способно не только увеличивать, но и уменьшать скорость релаксации [84]. Также неоднородное окружение влияет и на безызлучательный перенос энергии смежными молекулами (так называемый перенос энергии Фёрстера [85]).

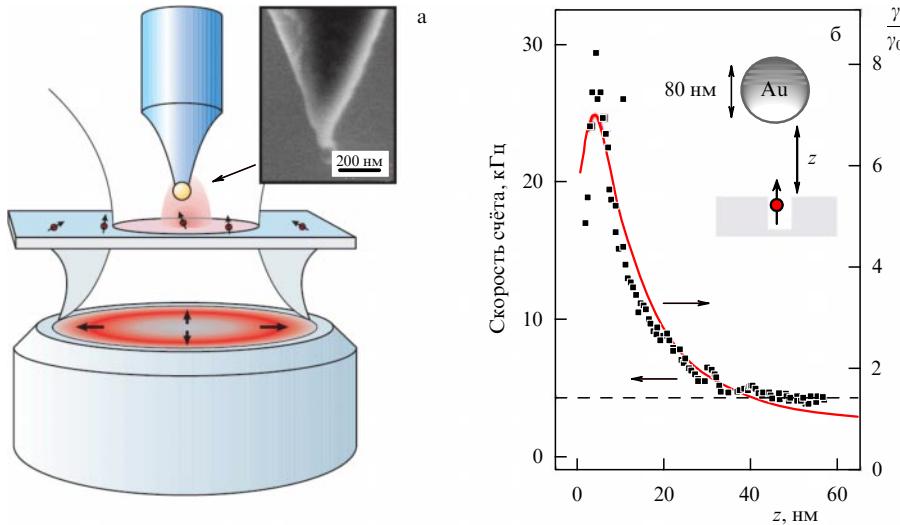


Рис. 3. (В цвете онлайн.) Влияние золотой НЧ, закреплённой на конце иглы сканирующего микроскопа, на флуоресценцию отдельной молекулы красителя нильский синий: (а) схема эксперимента, (б) экспериментальная (символы) и теоретическая (кривая) зависимости интенсивности флуоресценции от расстояния между наноантенной и молекулой красителя [87].

Концепция оптической наноантенны с одним флуорфором в качестве активного элемента и с оптическим возбуждением впервые была предложена в 2000 г. [86]. В начале 2000-х годов исследователи использовали отдельные флуоресцентные молекулы в качестве точечного зонда для количественной оценки концентрации электромагнитного поля вблизи иглы сканирующего микроскопа. Показано, что диаграмма направленности одиночных молекул может быть сильно модифицирована металлизированным зондом, который, по существу, выступал в качестве плазмонной наноантенны.

В 2006 г. две группы независимо в работах [87, 88] исследовали изменение флуоресценции молекулы красителя нильский синий (nile blue) в зависимости от расстояния до золотой сферической НЧ диаметром 80 нм, закреплённой на игле сканирующего микроскопа. Результаты измерений и теоретического расчёта, приведённые на рис. 3, показали, что при приближении НЧ к молекуле сначала происходит 30-кратное увеличение интенсивности флуоресценции, которое затем сменяется её гашением вследствие преобладания нерадиационных процессов.

Эксперименты чётко продемонстрировали три фактора усиления флуоресценции, которые имеют место для любой оптически управляемой наноантенны, их произведение определяет скорость счёта единичных флуоресцентных фотонов, испущенных КИ, и каждый из этих факторов участвует в изменении электромагнитного поля вокруг антенны:

$$I(\mathbf{r}, \omega_{\text{pump}}, \omega_{\text{em}}) \propto P_{\text{pump}}(\mathbf{r}, \omega_{\text{pump}})\varphi(\mathbf{r}, \omega_{\text{em}})C_{\text{NA}}(\mathbf{r}, \omega_{\text{em}}), \quad (19)$$

где аргумент \mathbf{r} подчёркивает зависимость интенсивности от местоположения КИ, ω_{pump} — частота накачки, ω_{em} — частота флуоресцентного излучения, C_{NA} — вероятность обнаружения детектором испущенного фотона. Рисунок 4 иллюстрирует эти факторы для случая металлической наносферы. Заметим, что в формуле (19) предполагается линейная зависимость интенсивности флуоресценции от накачки, что имеет место только при низких

интенсивностях накачки [89], соответствующих большинству экспериментов с единичными КИ.

Первый фактор, P_{pump} (рис. 4а), соответствует усилинию возбуждения единичного флуорфора и зависит от рассеивающих свойств антенны на длине волны накачки. Как только молекула возбуждается, остальные факторы вступают в действие. Собранный сигнал зависит от *квантовой эффективности* $\varphi(r)$, т.е. от вероятности того, что возбуждение КИ приведёт к испусканию фотона.

Энергия возбуждения любой квантовой системы диссирирует либо излучательным образом с испусканием фотона, либо безызлучательно, например, вследствие тушения окружающими атомами или молекулами. Скорость релаксации является суммой излучательной, γ_r , и безызлучательной, γ_{nr} , скоростей. В экспериментах по усилиению флуоресценции необходимо добиться максимальной *квантовой эффективности* КИ, или *квантового выхода* $\varphi(r) = \gamma_r / (\gamma_r + \gamma_{nr})$. В однородной среде квантовая эффективность $\varphi(r)$ идентична внутренней квантовой эффективности φ_0 , значение которой лежит в пределах от 0 до 1, а сам параметр определяет часть энергетических потерь, связанных с излучением. Неоднородности приводят к изменению γ_r и γ_{nr} , так как они являются функциями локального окружения. Конкретная среда может как повышать, так и понижать квантовую эффективность (рис. 4в). Изменение квантовой эффективности определяется PLDOS, зависимость которой от ориентации диполя вблизи золотой наносферы приведена на рис. 4б.

Отметим, что часто любое влияние PLDOS на скорость спонтанного излучения КИ в произвольном наноокружении называют "усилением Парселя", хотя сам Парсель никогда не рассматривал никакой системы, кроме резонатора. Однако термин "усиление Парселя" прижился в литературе, и часто термины "усиление Парселя" и PLDOS используются как эквивалентные.

Кроме изменения квантовой эффективности наноантенны могут также сильно изменять диаграмму направленности излучения (рис. 4г). Создание антенны с заданной диаграммой направленности приводит к повышению эффективности сбора флуоресцентных фотонов

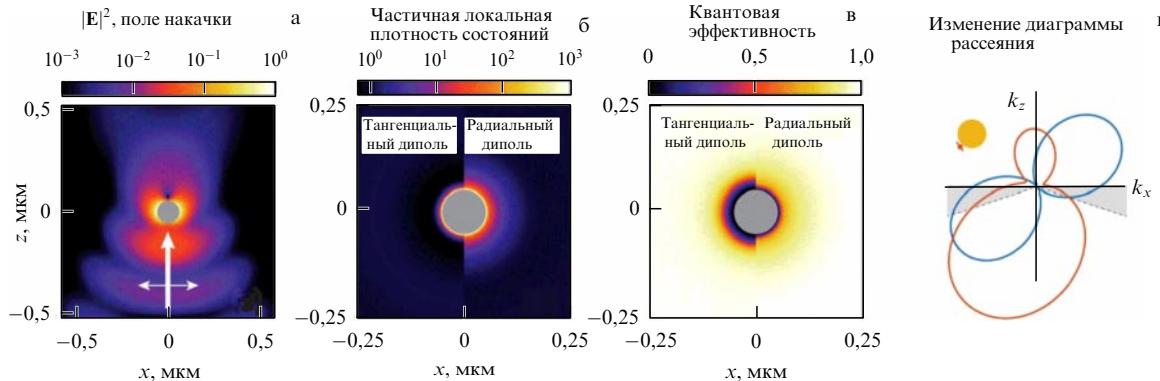


Рис. 4. (В цвете онлайн.) Все факторы, влияющие на эффекты усиления флуоресценции в оптически управляемыхnanoантеннах, сильно зависят от положения вблизи наноантенн. Приведён пример золотой сферической НЧ размером 100 нм в воде, возбуждаемой узким ($NA = 1,3$) лазерным пучком на длине волнны 567 нм, излучение происходит на длине волнны 600 нм. (а) Распределение поля накачки (первый член в (19)) для падающей снизу волны, поляризованной вдоль оси x . (б) Частичная локальная плотность состояний той же сферы Ми (на длине волнны излучения 600 нм) сильно увеличивается на поверхности металла, особенно для радиальных дипольных моментов перехода. (в) Квантовая эффективность излучения (второй член в (19)) при условии, что внутренняя эффективность КИ сильно уменьшается в оболочке радиусом 10 нм вокруг металла. (г) Пример перераспределения излучения, в данном случае для КИ (изображённого в верхней части рисунка), почти на поверхности НЧ и на расстоянии 10 нм от НЧ, в xz -плоскость (произвольно выбранная геометрия). Диаграмма направленности — полярный график для свободного КИ (синяя кривая) и КИ вблизи НЧ (оранжевая кривая). Закрашенная серым цветом область обозначает границы типичного конуса приёмки объектива с высокой числовой апертурой. В зависимости от геометрии вероятность сбора может сильно варьироваться (третий член в (19)). (Адаптированный рисунок из работы [90].)

оптической системой под конкретным телесным углом в дальней зоне.

Перечисленные выше эффекты усиления флуоресцентного излучения определяют список основных задач, которые надо решать при создании однофотонных наноантенн с оптическим приводом:

1. Управление усилением накачки, квантовой эффективностью и эффектами улучшения направленности для получения значимых преимуществ в производительности.

2. Контроль за позиционированием и ориентацией отдельных КИ и антенн с нанометровой точностью.

3. Разработка геометрии антенны-излучателя для проектирования требуемой диаграммы направленности.

3.3. Исследования квантового излучателя вблизи наночастицы и на подложках

Экспериментальные исследования единичных КИ являются крайне сложными. В первых экспериментах исследовались времена жизни атомов и ионов, в частности иона Eu^{3+} , расположенных вблизи частично отражающей плоской поверхности [91, 92]. Такая геометрия позволяет провести точные теоретические расчёты как в рамках классического [91, 93], так и квантового подходов [94]. Сравнение теоретических и экспериментальных результатов показало их хорошее согласие.

Впоследствии было опубликовано большое число работ по исследованию спонтанного излучения КИ вблизи НЧ конкретных геометрий: сферической [95, 96], бесконечного кругового идеально проводящего цилиндра [97–101]. В работе [75] получены простые асимптотики для атома, расположенного на поверхности (радиальная ориентация) диэлектрического цилиндра с размерами меньше длины волны.

Отдельный интерес представляют НЧ сфероидальной геометрии, поскольку влияние сфероида на спонтанное излучение КИ является промежуточным между случаями сферы и цилиндра и позволяет эффективно управлять скоростью как радиационных, так и нерадиацион-

ных процессов распада возбуждённого состояния КИ. Управление геометрическими размерами наносфераида — соотношением полуосей b/a — позволяет "настроиться" на плазмонные резонансы того или иного вещества.

Существенное ускорение спонтанных распадов вблизи наносфераида в случае плазмонного резонанса (рис. 5) может быть положено в основу работы безапертурного сканирующего микроскопа с отдельной молекулой в качестве объекта. В таком микроскопе иглу можно аппроксимировать вытянутым наносфераидом, в котором возможно возбуждение плазмонного резонанса на частоте излучения молекулы. При этом предполагается, что полоса поглощения молекулы находится вдали от плазмонного резонанса. В работах [102, 103] проведены расчёты, показывающие, что в микроскопе такого рода возможно определение с нанометровым разрешением как положения молекулы, так и ориентации её дипольного момента.

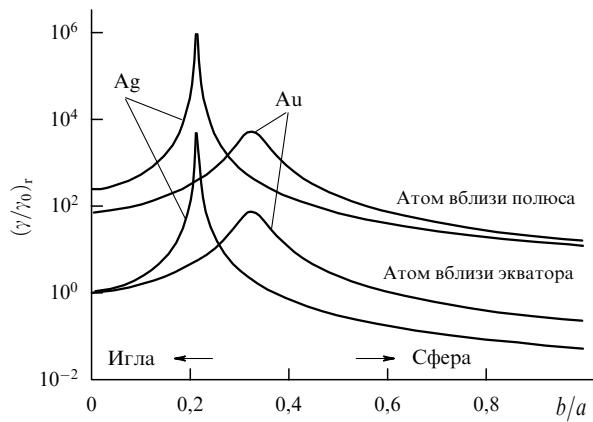


Рис. 5. Зависимости скоростей спонтанных переходов вблизи НЧ в форме наносфераидов из золота ($\epsilon = -8,7 + i1,16$, $\lambda = 600$ нм) и серебра ($\epsilon = -15,7 + i0,21$, $\lambda = 62,8$ нм) от отношения b/a осей сфероида при ориентации диполя параллельно оси сфероида [34].

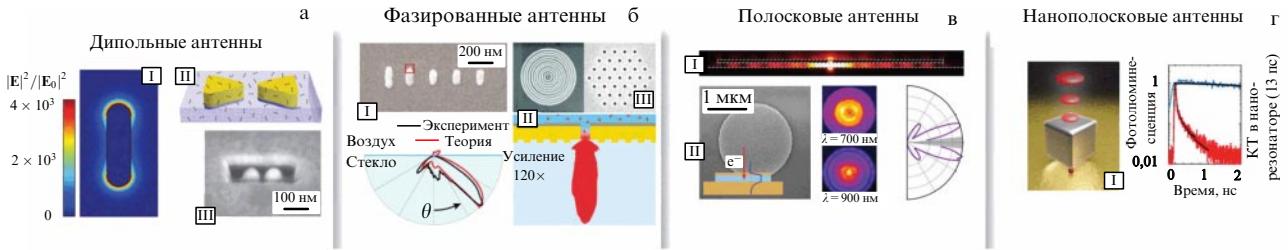


Рис. 6. (В цвете онлайн.) Однофотонные наноантенны. (а) Дипольные антенны в форме наностержней и димерные/щелевые антенны. Сообщалось, что они дают 1000-кратное увеличение яркости флуоресценции для изначально плохих излучателей в равных частях за счёт накачки и улучшения LDOS. (б) Фазированные НЧ или антенны с отверстиями изменяют направленность излучения обычно с плохим контролем фактора Парселя. (в) Полосковые антенны представляют собой волновод типа металл – изолатор – металл для получения высоких LDOS. Утечка излучения по краям является направленной и зависит от размера области. (г) Полосковые наноантенны на основе металлической НЧ – диэлектрика – металла, согласно литературе, показывают более чем 500-кратное увеличение по Парселлу и почти 2000-кратное повышение яркости даже для действительно хороших излучателей. Однако, несмотря на то что в какой-то степени такая антенна является направленной, её трудно контролировать. (Адаптированный рисунок из работы [90].)

Другой моделью иглы микроскопа может служить коническая поверхность. Теоретические расчёты скорости спонтанного распада КИ вблизи такой поверхности проведены в работах [104, 105].

Большое число плазмонных наноантенн, которые могут существенно усиливать ближнее поле, не будут при этом приводить к эффективному увеличению флуоресценции КИ. Здесь интуитивно понятным будет определение "тёмной" плазмоники, когда доминируют безызлучательные каналы распада, и "светлой" плазмоники, когда доминирует радиационный канал распада. В работе [90] приведена классификация разных типов антенн, дающих яркое, усиленное плазмонами, излучение (рис. 6).

Для дипольных антенн (рис. 6а), таких как наностержни [106] и димерные антенны с зазорами [107–109], сообщалось об усилении до 1000 раз, при этом яркость флуоресценции в равных долях увеличивается благодаря усилению накачки и повышению локальной плотности состояний. Детальное описание спонтанного излучения КИ вблизи дипольных наноантенн наиболее общего вида (наноэллипсоидов) дано в работах [110, 111], а вблизи дисков — в работах [28, 112, 113].

Массив сферических НЧ [114] или антенны в виде группы наноотверстий [115, 116] (рис. 6б) позволяют управлять направленностью излучения, но, как правило, фактор Парселя у таких антенн довольно низкий. Полосковые антенны [117, 118] (рис. 6в) позволяют получать высокую LDOS. Излучение через края является направленным, в зависимости от размеров включений.

Нанорезонаторы, интегрированные с квантовыми точками (КТ) [119], — ещё один тип антенн, приводящих к увеличению общей интенсивности излучения примерно в 2×10^3 раз. Такие антенны имеют универсальную геометрию, которую может быть интегрировано множество других КИ, например NV-центры.

Дизельтрические антенны на частотах вблизи мультипольных резонансов также позволяют получить ярко выраженную направленность [120–122] и могут дать значительное увеличение яркости флуоресценции [123], однако сильного увеличения фактора Парселя достичь здесь гораздо труднее [124].

Как мы говорили выше, сейчас всё активнее исследуются так называемые гибридные наноантенны. Например, в теоретической работе [109] предложена концепция гибридной металло-диэлектрической наноантенны типа

"бабочка". Такая наноантенна представляет собой традиционную плазмонную наноантенну в форме бабочки, наконечники которой выполнены из алмаза, содержащего азотзамещённую вакансию (так называемый NV-центр, от англ. Nitrogen Vacancy). NV-центры в алмазе являются перспективными кандидатами на роль КИ благодаря простой структуре их энергетических уровней и возможности управления электронными спинами центров посредством микроволнового излучения и, вследствие этого, модуляции спектров поглощения и люминесценции.

Авторы работы [109] показали, что в такой наноантенне объём моды весьма мал и электрическое поле сконцентрировано в центре бабочки, где сосредоточены NV-центры. Это увеличивает фактор Парселя до значений порядка 110, а также повышает эффективность сбора излучённых фотонов в 1,77 раза.

В работе [125] изучались асимметричные гибридные димерные наноантенны, состоящие из металлической и кремниевой сферических НЧ (рис. 7а), называемые димером Януса. Подробно исследованы диаграммы направленности таких антенн, показано, что подавление заднего лепестка диаграммы направленности достигается благодаря деструктивной интерференции оптических волн, рассеянных на магнитном дипольном моменте дизельтрической наносферы, и волн, рассеянных на электрическом дипольном моменте металлической наносферы. Из-за относительно малой спектральной ширины магнитной дипольной моды однонаправленное рассеяние имеет узкополосный характер. Авторы показали, что однонаправленное рассеяние усиливается при создании цепочек с большим количеством димеров Януса, что объясняется дополнительной интерференцией волн, рассеянных на соседних димерах, за счёт которой исчезает рассеяние света в боковом и заднем направлениях и усиливается излучение в прямом направлении.

В зазоре такого димера происходит многократное усиление электрического поля, что может быть использовано для возбуждения энергетических переходов флуоресцентных молекул и других КИ. Детальное аналитическое исследование всех характеристик такой наноантенны вне рамок диполь-дипольного приближения, которое неприменимо при малых расстояниях между наночастицами, проведено в работах [28, 112, 113, 126, 127]. В них в рамках квазистатического приближения исследованы скорости спонтанного распада возбуждён-

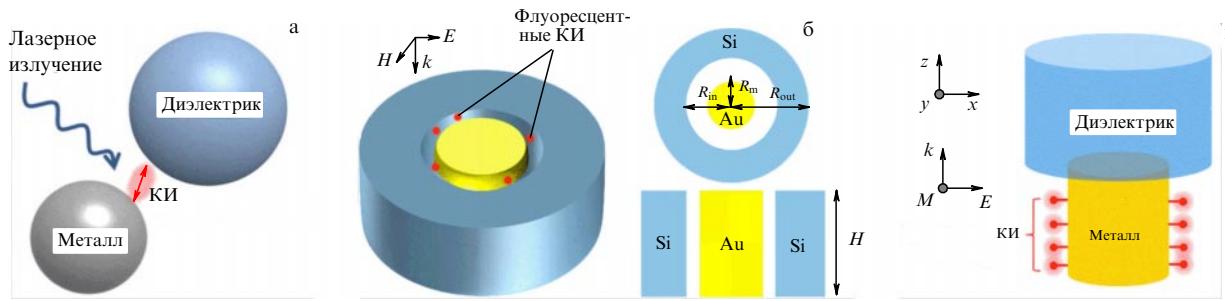


Рис. 7. (В цвете онлайн.) (а) Асимметричная гибридная димерная наноантенна, состоящая из металлической и кремниевой сферических НЧ. (б) Гибридная антenna более сложной формы, состоящая из внутреннего металлического (Au) нанодиска и внешнего диэлектрического (Si) полого цилиндра. (в) Гибридная антenna из металлического и диэлектрического наноцилиндров в форме гриба.

ного состояния КИ, находящегося вблизи кластера из двух НЧ (наносфер) из произвольного материала с произвольным взаимным расположением. Построенная теория позволяет найти скорости распадов для различных ориентаций дипольного момента и расположений КИ относительно кластера. Показано, что существенное увеличение скоростей распадов происходит на резонансных частотах, соответствующих частотам плазмонных колебаний кластера, определяемых взаимным расположением НЧ. Наибольшее увеличение скоростей спонтанных распадов имеет место для КИ, расположенного в центре кластера, при малых расстояниях между НЧ. Установлено, что, изменяя расстояние между НЧ кластера, можно эффективно управлять скоростью спонтанных распадов для КИ, находящегося в пространстве между НЧ. Исследован сдвиг частоты излучения расположенного в произвольной точке КИ, имеющего в общем случае произвольно ориентированный относительно кластера дипольный момент. Рассмотрены асимптотические выражения как для скоростей спонтанных распадов, так и для сдвига частоты. Показано, что при расстояниях между центрами одинаковых НЧ более восьми их радиусов для вычисления основных вкладов в исследуемые характеристики можно пользоваться моделью, в которой сферы заменяются точечными диполями с поляризациями, равными поляризациям каждой из сфер в однородном поле.

В недавней работе [128] рассматривается изменение скорости радиационных и нерадиационных распадов КИ (электрического или магнитного диполя), расположенного в зазоре такого димера, в зависимости от ориентации (вдоль или поперёк оси димера) единичного диполя и от возбуждаемого в дипольной НЧ резонанса. Также исследован потенциал гибридного димера, используемого в качестве антенны для усиления флуоресцентного излучения. В данном случае КИ моделировался как статистический ансамбль случайно ориентированных диполей, расположенных вдоль оси димера. Были рассмотрены три варианта димеров: металл – диэлектрик, металл – металл, диэлектрик – диэлектрик. Для них рассчитаны скорости радиационного распада $\gamma_{\text{ext}}/\gamma_0$, усреднённый квантовый выход $\langle q/q_0 \rangle$ и усреднённое усиление флуоресцентного излучения $\langle \eta_{\text{em}}/\eta_0 \rangle$.

Расчёт показал, что, поскольку гибридный димер объединяет как металлические, так и диэлектрические НЧ, соответствующая скорость возбуждения флуоресценции и средний квантовый выход закономерно ограничены величинами, находящимися в интервале между таковыми для систем чисто металлического и диэлектри-

ческого димеров. Тем не менее окончательное усиление флуоресцентного излучения зависит от произведения скорости радиационного распада и выхода, поэтому гибридный димер даёт возможность достичь лучшего баланса между скоростью возбуждения флуоресценции и квантовым выходом. В конечном итоге для гибридного димера $\langle \eta_{\text{em}}/\eta_0 \rangle = 87$, что на 30 % выше, чем у чисто диэлектрического димера ($\langle \eta_{\text{em}}/\eta_0 \rangle = 67$), и очень близко к величине для металлического димера ($\langle \eta_{\text{em}}/\eta_0 \rangle = 90$).

В работе [129] рассмотрена гибридная антenna более сложной формы, состоящая из внутреннего металлического (Au) нанодиска и внешнего диэлектрического (Si) полого цилиндра (рис. 7б). В отличие от гибридного димера из двух наносфер, данная антenna позволяет подобрать геометрические размеры таким образом, что увеличение интенсивности флуоресценции КИ в зазоре антены будет на три порядка больше ($FE_{\text{tot}}/(FE_0) > 1500$) по сравнению с интенсивностью излучения КИ в свободном пространстве. Также показано, что интенсивность флуоресценции КИ вблизи гибридной металло-диэлектрической антены на два порядка больше интенсивности КИ, расположенного вблизи только металлической или только диэлектрической частей такой антены. Авторы [129] подробно исследовали важную задачу поиска оптимального расположения КИ относительно наноантенны, при котором скорость радиационного распада максимальна, а эффект тушения флуоресценции минимален.

В работе [130] рассмотрена гибридная антenna в форме гриба (рис. 7в). Резонансы "грибных" наноантенн можно гибко настраивать на произвольные длины волн, что позволяет им соответствовать стоксовым сдвигам широкого спектра флуоресцентных КИ. Длину волны возбуждения можно удобно регулировать, изменяя материал и морфологию металлической ножки, поскольку резонансные свойства хорошо сохраняются в структуре гриба, тогда как длину волны излучения легко контролировать, изменения морфологию диэлектрического колпачка, что можно наблюдать непосредственно в спектрах. Эти два примера иллюстрируются на рис. 7. При изменении материала ножки от Ag до Au длина волны возбуждения была настроена от 425 до 520 нм, как показано на рис. 7а, что соответствовало резонансному свойству изолированного цилиндра Au. Распределение поля изображено на рис. 7б. Простым изменением размера цилиндрического колпачка Si магнитно-дипольные резонансы могут быть расположены в диапазоне 590–715 нм, чтобы соответствовать различным длинам волн эмиссии КИ, как показано на рис. 7в.

4. Квантовая оптика квантового излучателя в ближнем поле наночастицы

Рассмотрим эффекты квантовой оптики в системе КИ в ближнем поле плазмонной НЧ во внешнем электромагнитном поле. Механизмы модификации скоростей радиационного и нерадиационного распадов в простейшей модели двухуровневого КИ, расположенного в непосредственной близости от плазмонной НЧ, а также распределение интенсивности и поляризации ближнего поля вокруг НЧ детально рассмотрены в разделе 2. Здесь мы обсудим эффекты квантовой оптики в системе (НЧ + КИ) + внешнее лазерное поле: модификацию спектра резонансной флуоресценции КИ в ближнем поле, явление группировки/антигруппировки и квантовой статистики фотонов в спектре, формирование сжатых состояний света, генерацию квантовых запутанных состояний в таких системах.

4.1. Спектр резонансной флуоресценции квантового излучателя

Обсуждение влияния НЧ на спектр резонансной флуоресценции двухуровневого КИ показательно начать с рассмотрения сферической плазмонной НЧ. Мы рассматриваем спектр резонансной флуоресценции, а не спектр, например, спонтанной флуоресценции, поскольку именно первый несёт в себе информацию о квантовых свойствах взаимодействия света с КИ + НЧ. Впервые такая задача была решена в работе [131] (см. ниже вставку на рис. 10). Двухуровневый КИ расположен вблизи НЧ в точке с радиусом-вектором \mathbf{r}_0 , система КИ – НЧ взаимодействует с линейно поляризованным лазерным полем, ширина линии которого $\Delta\omega_L = 1$ МГц.

Спектр резонансной флуоресценции двухуровневого КИ в свободном пространстве состоит из трёх хорошо разделённых спектральных линий — триплета флуоресценции Апанасевича – Моллоу, который впервые был предсказан П.А. Апанасевичем в работах [132, 133], а затем Ньюстайном [134] и Моллоу [135]. Экспериментально резонансная флуоресценция подробно изучена в [136]. Структура энергетических уровней двухуровневого КИ ("одетые состояния") показана на рис. 8а, спектр его резонансной флуоресценции приведён на рис. 8б.

Теория резонансной флуоресценции единичного КИ хорошо известна, она представлена, например, в работе [137] и может быть применена к случаю КИ в любом окружении. Из этой теории следует, что спектральная плотность флуоресценции, испускаемой КИ (резонансная флуоресценция), определяется нормально упорядоченной корреляционной функцией $\langle E^{(-)}(\mathbf{r}, t)E^{(+)}(\mathbf{r}, t + \tau) \rangle$

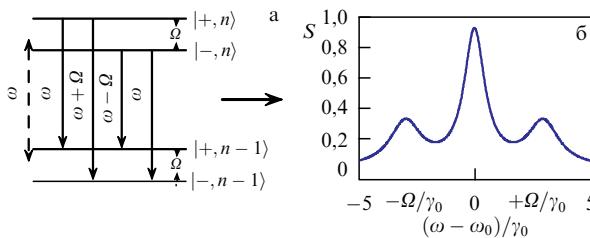


Рис. 8. (а) Схема расщеплённых уровней двухуровневого КИ ("одетые состояния"). (б) Спектры резонансной флуоресценции КИ в сильном поле в отсутствие НЧ ($\Omega > \gamma_0$) (триплет Апанасевича – Моллоу). Индекс n — энергия уровня, выраженная в фотонах моды ω поля.

флуоресцентного света в некоторой конкретной выбранной точке \mathbf{r} в дальней зоне, где $E^{(+)}(\mathbf{r}, t)$, $E^{(-)}(\mathbf{r}, t)$ — положительная и отрицательная частотные части оператора электрического поля:

$$S(\mathbf{r}, \omega_L) = \text{Re} \int_0^\infty d\tau \langle E^{(-)}(\mathbf{r}, t)E^{(+)}(\mathbf{r}, t + \tau) \rangle \exp(i\omega_L \tau). \quad (20)$$

Для двухуровневого КИ корреляционная функция упрощается до [137]

$$\begin{aligned} \langle E^{(-)}(\mathbf{r}, t)E^{(+)}(\mathbf{r}, t + \tau) \rangle = I_0(\mathbf{r}) \sin^2 \psi \exp(-i\omega\tau) \times \\ \times \left(\frac{\Omega^2(\mathbf{r})}{\gamma^2(\mathbf{r}) + 2\Omega^2(\mathbf{r})} \right) \left[\frac{\gamma^2(\mathbf{r})}{\gamma^2(\mathbf{r}) + 2\Omega^2(\mathbf{r})} + \frac{\exp(-\gamma\tau/2)}{2} + \right. \\ \left. + \frac{\exp(-3\gamma\tau/4)}{4} \left\{ \exp(-i\mu(\mathbf{r})\tau)(P(\mathbf{r}) + iQ(\mathbf{r})) + \right. \right. \\ \left. \left. + \exp(i\mu(\mathbf{r})\tau)(P(\mathbf{r}) - iQ(\mathbf{r})) \right\} \right], \end{aligned} \quad (21)$$

где $I_0(\mathbf{r}) = [(\omega^2|\mathbf{d}|)/(c^2|\mathbf{r}|)]^2$, Ω — частота Раби, ψ — угол между осью z и направлением диполя, находящегося в плоскости yz , мы считаем, что наблюдатель находится на оси z , а $P = P(\mathbf{r})$, $Q = Q(\mathbf{r})$ и $\mu = \mu(\mathbf{r})$ определены как

$$\begin{aligned} P(\mathbf{r}) = \frac{2\Omega^2(\mathbf{r}) - \gamma^2(\mathbf{r})}{2\Omega^2(\mathbf{r}) + \gamma^2(\mathbf{r})}, \quad Q(\mathbf{r}) = \frac{\gamma(\mathbf{r})}{4\mu(\mathbf{r})} \frac{10\Omega^2(\mathbf{r}) - \gamma^2(\mathbf{r})}{2\Omega^2(\mathbf{r}) + \gamma^2(\mathbf{r})}, \\ \mu(\mathbf{r}) = \left(\Omega^2(\mathbf{r}) - \frac{\gamma^2(\mathbf{r})}{16} \right)^{1/2}. \end{aligned} \quad (22)$$

Здесь влияние НЧ учитывается с помощью эффективных (модифицированных НЧ) значений частоты Раби и ширины линий.

Используя преобразование Фурье

$$\langle E^{(-)}(\mathbf{r}, t)E^{(+)}(\mathbf{r}, t + \tau) \rangle,$$

а также учитывая, что

$$\int_0^\infty d\tau \exp\left(-i\omega t - \frac{\gamma\tau}{2} + i\omega_L \tau\right) = \frac{1}{i(\omega - \omega_L) + \gamma/2}, \quad (23)$$

$$\begin{aligned} \int_0^\infty d\tau \exp\left(-i\omega t \mp i\mu\tau - \frac{3\gamma\tau}{4} + i\omega_L \tau\right) = \\ = \frac{1}{i(\omega - \omega_L \pm \mu) + 3\gamma/4}, \end{aligned} \quad (24)$$

получим спектральную плотность $S(\mathbf{r}, \omega_L)$ электромагнитного поля в точке \mathbf{r} :

$$\begin{aligned} S(\mathbf{r}, \omega_L) = I_0(\mathbf{r}) \left(\frac{\Omega^2(\mathbf{r})}{\gamma^2(\mathbf{r}) + 2\Omega^2(\mathbf{r})} \right) \times \\ \times \left[\frac{\gamma^2(\mathbf{r})}{\gamma^2(\mathbf{r}) + 2\Omega^2(\mathbf{r})} \delta(\omega - \omega_L) + \frac{\gamma(\mathbf{r})}{(\omega - \omega_L)^2} + \right. \\ \left. + \frac{\alpha_+(\mathbf{r})}{(\omega + \mu(\mathbf{r}) - \omega_L)^2} + \frac{\alpha_-(\mathbf{r})}{(\omega - \mu(\mathbf{r}) - \omega_L)^2} \right], \end{aligned} \quad (25)$$

где

$$\alpha_{\pm} = \frac{3\gamma(\mathbf{r})}{4} P(\mathbf{r}) \pm (\omega \pm \mu(\mathbf{r}) - \omega_L) Q(\mathbf{r}). \quad (26)$$

Из уравнения (25) видно, что резонансная флуоресценция двухуровневого КИ в свободном пространстве состоит, как правило, из четырёх компонент, интенсивности которых в значительной степени зависят от интенсивности управляющего поля и всех четырёх вкладов. Скорости затухания в этом уравнении определяют ширину соответствующих лоренцевых линий в спектре, который состоит из трёх лоренцевых профилей на частотах ω_L , $\omega_L \pm \Omega$ и когерентного отклика на частоте ω_L .

Для расчёта резонансной флуоресценции вблизи НЧ необходимо учесть, что частоты Раби и скорости радиационного распада изменяются. Модифицированная частота Раби в случае наносферы с учётом (3) примет вид

$$\begin{aligned} \Omega(\mathbf{r}) &= \frac{d}{\hbar} \sqrt{|E_r|^2 + |E_\theta|^2} = \\ &= \frac{d}{\hbar} \left[\left| E_0 \cos \theta \left(\frac{2a^3}{r^3} \frac{\epsilon(\omega) - 1}{\epsilon(\omega) + 2} + 1 \right) \right|^2 + \right. \\ &\quad \left. + \left| E_0 \sin \theta \left(\frac{a^3}{r^3} \frac{\epsilon(\omega) - 1}{\epsilon(\omega) + 2} - 1 \right) \right|^2 \right]^{1/2}, \end{aligned} \quad (27)$$

где d — дипольный момент КИ (в гауссовой системе единиц), E_0 — амплитуда внешнего поля, $\hat{\mathbf{r}}$ и $\hat{\mathbf{n}}_\theta$ — единичные векторы в сферической системе координат, $\epsilon(\omega)$ — диэлектрическая проницаемость НЧ на частоте ω . Здесь стоит отметить, что в случае сферы $E_\phi = 0$.

Полная нормированная скорость распада КИ, находящегося в точке \mathbf{r} , с дипольным моментом КИ, ориентированным вдоль направления локального поля в этой точке, может быть определена как

$$\frac{\gamma}{\gamma_0} = \frac{|E_r|^2 (\gamma/\gamma_0)_{\text{rad}} + (|E_\theta|^2 + |E_\phi|^2) (\gamma/\gamma_0)_{\tan}}{\sqrt{|E_r|^2 + |E_\theta|^2 + |E_\phi|^2}}, \quad (28)$$

где $(\gamma/\gamma_0)_{\text{rad}}$ — полная скорость распада для радиальной ориентации дипольного момента КИ, которая может быть выражена в виде

$$\begin{aligned} \left(\frac{\gamma}{\gamma_0} \right)_{\text{rad}} &\xrightarrow{|\mathbf{k}|a \rightarrow 0} \frac{3}{2(|\mathbf{k}||\mathbf{r}|)^3} \text{Im} \sum_{n=1}^{\infty} (n+1)^2 \left(\frac{a}{|\mathbf{r}|} \right)^{2n+1} \times \\ &\times \frac{\alpha_n}{a^{2n+1}} + \left| 1 + \frac{2\alpha_1}{|\mathbf{r}|^3} \right|^2 + O\left(\frac{1}{|\mathbf{k}|a} \right), \end{aligned} \quad (29)$$

$(\gamma/\gamma_0)_{\tan}$ — полная скорость затухания тангенциальной ориентации дипольного момента атома,

$$\begin{aligned} \left(\frac{\gamma}{\gamma_0} \right)_{\tan} &\xrightarrow{|\mathbf{k}|a \rightarrow 0} \frac{3}{4(|\mathbf{k}||\mathbf{r}|)^3} \text{Im} \sum_{n=1}^{\infty} n(n+1) \left(\frac{a}{|\mathbf{r}|} \right)^{2n+1} \times \\ &\times \frac{\alpha_n}{a^{2n+1}} + \left| 1 - \frac{\alpha_1}{|\mathbf{r}|^3} \right|^2 + O\left(\frac{1}{|\mathbf{k}|a} \right), \end{aligned} \quad (30)$$

где α_n — мультипольные поляризуемости n -го порядка, обобщающие дипольную поляризуемость при $n = 1$,

$$\alpha_n = a^{2n+1} \frac{\epsilon(\omega) - \epsilon_2}{\epsilon(\omega) + \epsilon_2(n+1)/n}. \quad (31)$$

Результаты расчёта спектров резонансной флуоресценции КИ в свободном пространстве и вблизи НЧ показаны на рис. 9, 10. Из рисунка 9 видно, что в пределе слабого падающего лазерного поля спектр резонансной

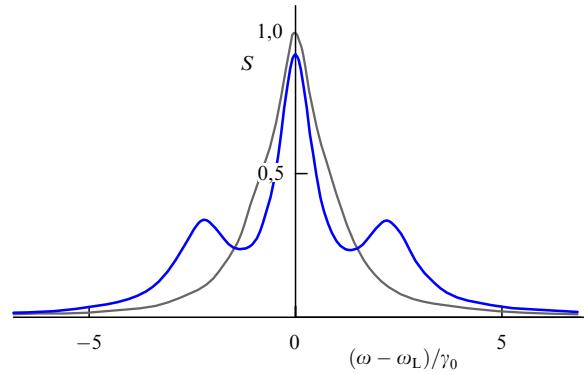


Рис. 9. (В цвете онлайн.) Спектр резонансной флуоресценции двухуровневого КИ. $\gamma_0 = 20$ МГц в свободном пространстве (светлая кривая) и вблизи сферической НЧ (тёмная кривая) радиусом $a = 20$ нм на расстоянии 20 нм от поверхности НЧ и $\theta = 0,3$ рад (17°) в слабом лазерном поле, $\lambda = 632,8$ нм и $\Omega = 0,8\gamma_0$, $E_0 = 500$ В м⁻¹.

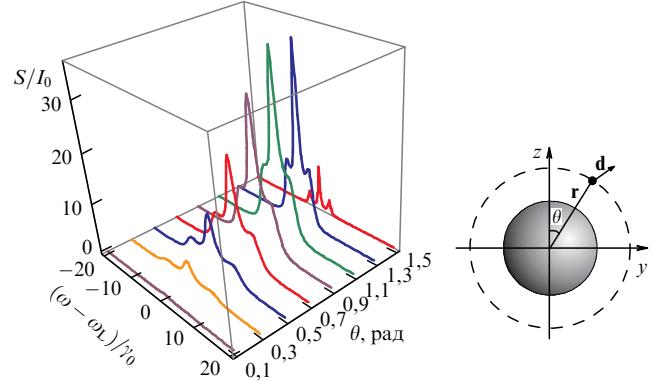


Рис. 10. (В цвете онлайн.) Нормированный на I_0 спектр резонансной флуоресценции двухуровневого КИ около сферической НЧ радиусом $a = 20$ нм в зависимости от угла $\theta = 0,1\text{--}1,5$ рад (от $5,7^\circ$ до $85,9^\circ$), расстояние от КИ до поверхности НЧ 10 нм, $\lambda = 632,8$ нм, $\gamma_0 = 20$ МГц, $E_0 = 2000$ В м⁻¹.

флуоресценции двухуровневого КИ в свободном пространстве имеет только одну ярко выраженную линию при нулевой отстройке частоты. Размещение НЧ в непосредственной близости от КИ усиливает локальное поле и влияет на частоту Раби и скорость распада КИ, так что спектр резонансной флуоресценции обогащается, и можно чётко увидеть тройчатую структуру спектра Апанацевича–Моллоу. Игра с этими параметрами открывает новые возможности управления свойствами атома с помощью НЧ.

На рисунке 10 показано изменение спектра резонансной флуоресценции КИ, удалённого от поверхности наночастицы на 10 нм, в зависимости от угла θ расположения КИ. Спектр резонансной флуоресценции зависит от положения наблюдателя как $S \sim \psi^2$ (25), где ψ — угол между направлением диполя КИ и осью z . В данном случае наблюдатель расположен на оси z , а дипольный момент КИ ориентирован по направлению локального поля, так что при углах $\theta = 0$ и 90° (1,57 рад) регистрируемая наблюдателем интенсивность резонансной флуоресценции КИ в этих точках пространства стремится к нулю. Напряжённость локального поля достигает максимума при $\theta = 0$ и минимума при $\theta = 90^\circ$, так что с увеличением θ боковые линии спектра смешены в сторону центральной линии из-за уменьшения частоты

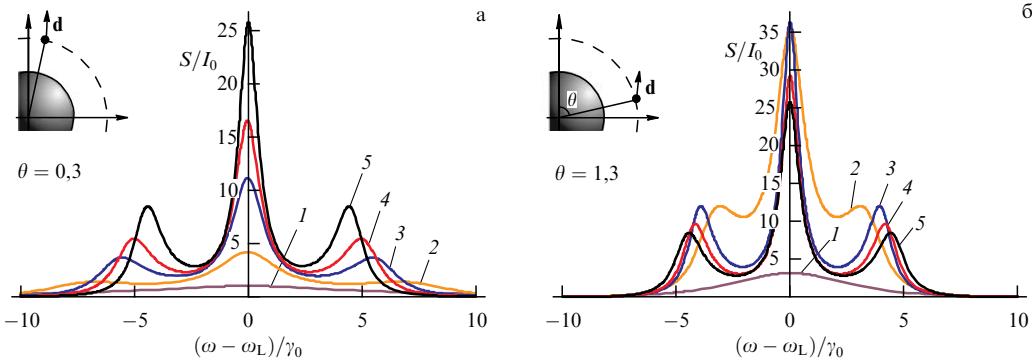


Рис. 11. (В цвете онлайн.) Нормированный на I_0 спектр резонансной флуоресценции двухуровневого КИ, расположенного около сферической НЧ радиусом $a = 20$ нм, для двух положений КИ: $\theta = 0,3$ рад (а) и $1,3$ рад (б). Расстояние от КИ – НЧ до поверхности 5 нм (кривая 1), 10 нм (2), 20 нм (3), 30 нм (4); кривая 5 соответствует КИ в свободном пространстве; $\lambda = 632,8$ нм, $\gamma_0 = 20$ МГц, $E_0 = 2000$ В м $^{-1}$.

Раби. Отметим также, что при $\theta = 1,1$ рад (67°) наблюдается максимальная интенсивность резонансной флуоресценции (см. рис. 10).

Спектр резонансной флуоресценции двухуровневого КИ существенным образом зависит от расстояния между КИ и поверхностью НЧ при фиксированных значениях угла θ (рис. 11). Уменьшение расстояния между КИ и поверхностью НЧ приводит к сужению линий резонансной флуоресценции и уменьшению расстояния между ними. На расстояниях менее 5 нм скорость безызлучательного распада КИ значительно превышает скорость радиационного распада и, как следствие, наблюдается так называемый эффект тушения флуоресценции.

Описанный выше подход к анализу взаимодействия КИ с НЧ в значительной степени выполнен в приближении матрицы плотности. Отметим, однако, что более глубокий подход к описанию квантовых свойств света, излучаемого КИ в присутствии НЧ, основан на применении квантовой электродинамики.

Так, авторы работ [73, 138] рассмотрели в рамках КЭД сильное резонансное взаимодействие двухуровневого КИ (атома) с континуумом квантованных электромагнитных мод, попадающих в контур резонансной моды диэлектрической микросферы. Получены аналитические решения. В качестве начального условия рассматривается случай, когда в момент времени $t = 0$ возбуждается атом и резонансные моды микросферы содержат однофотонный волновой пакет. Показано, что свойства испускаемой фотонной пары в решающей степени зависят от пространственно-временных свойств фотонного волнового пакета, содержащегося в резонаторе. Когда средний квадрат электрического поля волнового пакета фотонов в начальный момент в точке расположения КИ близок к вакуумному значению, излучение КИ аналогично спонтанному, а испускаемая пара фотонов не коррелирована. Напротив, если среднее значение квадрата электрического поля волнового пакета фотонов в начальный момент в расположении КИ существенно больше вакуумной величины, то излучение атома носит стимулированный характер и испускаемая фотонная пара имеет очень сложные сильные корреляции. Кратко обсуждается связь между полученными результатами и предсказаниями теории одетых состояний. Результаты носят общий характер и могут быть применены для описания сильного резонансного взаимодействия между КИ и резонаторами.

В работе [139] проведён учёт влияния квантовых флуктуаций и корреляций на динамику НЧ и двухуровневого КИ во внешнем оптическом поле в приближении малого числа плазмонов. Показано, что при увеличении константы взаимодействия между КИ и НЧ вследствие возникновения резонанса Фано форма триплета Апансевича – Моллоу сначала становится асимметричной, затем исчезают боковые максимумы и далее триплет вырождается в единственную лоренцеву линию.

Кроме того, важно понимать области применимости квантового и полуклассического описания рассматриваемых систем. В работе [140] проведено подробное квантово-механическое исследование спектров флуоресценции молекулы вблизи плазмонной НЧ. Авторы рассмотрели режимы как слабой, так и сильной связи, а также возбуждение в НЧ мод высоких порядков и показали, что сильная связь возникает на расстояниях менее 5 нм и требует полностью квантово-механического описания, в то время как для описания взаимодействия на больших расстояниях вполне применимо полуклассическое приближение.

Модель двухуровневого КИ является наиболее простой моделью, однако в литературе описаны исследования и более сложных КИ. Так, в работе [141] исследовалась резонансная флуоресценция трёхуровневого КИ А-типа, находящегося вблизи сферической металлической НЧ. Авторы рассмотрели случай, когда КИ возбуждается лазерным полем вдоль одного из оптических переходов. Показано, что форма спектра зависит от взаимной ориентации дипольных моментов оптических переходов по отношению к поверхности металлической НЧ. Также показано, что расположение и ширина пиков в спектре сильно модифицируются экситон-плазмонной связью и лазерной расстройкой и это позволяет получить контролируемую спектральную линию на втором неуправляемом переходе в А-системе с шириной существенно уже естественной.

Продолжением данного исследования явилась работа [142], в которой теоретически исследована резонансная флуоресценция четырёхуровневого КИ двойного V-типа вблизи плазмонной НЧ. Квантовая система взаимодействует с двумя ортогональными циркулярно поляризованными лазерными полями с одинаковой частотой и интенсивностью, но с разными фазами. В качестве плазмонной НЧ рассматривался двумерный массив диэлектрических наносфер с металлическим покрытием.

Данный КИ демонстрирует квантовую интерференцию при спонтанном излучении вблизи плазмонной НЧ. Авторы [142] показали, что наличие плазмонной НЧ приводит к сильной модификации спектра резонансной флуоресценции. Кроме того, спектр её резонансной флуоресценции и корреляционная функция второго порядка сильно зависят от фазы, так что относительную фазу лазерных полей можно использовать для эффективного управления характеристиками резонансной флуоресценции.

Существуют работы, в которых исследуется модификация спектров резонансной флуоресценции для различных НЧ [143–149]. Однако все эти работы являются теоретическими, поскольку наблюдение резонансной флуоресценции систем атом + НЧ является сложной экспериментальной задачей даже с учётом современного развития технологий. Среди этих работ можно выделить работу [150], которая, хотя и не исследует систему КИ + НЧ, рассматривает интересный и перспективный для квантовых вычислений объект — искусственный атом. В качестве искусственного атома рассматривался джозефсоновский кубит. В работе экспериментально исследована резонансная флуоресценция такого атома.

4.2. Статистика фотонов спектра резонансной флуоресценции квантового излучателя

Важной характеристикой резонансной флуоресценции является статистика распределения фотоотсчётов флуоресцентных фотонов, на которую влияет наличие НЧ вблизи КИ. В работе [151] впервые была теоретически исследована статистика числа фотонов резонансной флуоресценции двухуровневого КИ вблизи металлической сферической НЧ, возбуждаемой лазерным полем с конечной шириной полосы. Анализ показал, что вся интересная физика здесь происходит в небольшой области вокруг НЧ, где ближнее поле и связь КИ–НЧ существенно влияют на излучательные свойства КИ. Оценки показывают, что размеры этой области $r \leq 2a$ (r — расстояние от центра НЧ до КИ), a — радиус

наносферы. На больших расстояниях влияние НЧ исчезает и КИ ведёт себя так же, как в свободном пространстве.

На рисунке 12 показано поведение времени T_{conv} схождения статистики фотоотсчётов к распределению Гаусса для КИ в точке с координатами r, θ вокруг НЧ для трёх значений отстройки D лазерного излучения и конечной полосы пропускания лазера $\Delta\omega_L = 1$ МГц. Из рисунка видно, что время схождения существенно зависит от координат КИ вокруг наносферы на расстояниях $r \leq 50$ нм для $D = 0$, $r \leq 40$ нм для $D = 1$ и $r \leq 30$ нм для $D = 5$, что, по существу, отражает область, в которой ближнее поле металлической НЧ является существенным. Вблизи $\theta = \pi/2$ время схождения достигает своего глобального максимума при $r = 23$ нм: $T_{\text{conv}}^{\max} = 0,3$ мкс для $D = 0$ и $T_{\text{conv}}^{\max} = 9$ мкс при $D = 5$, что на два порядка больше, чем для КИ в свободном пространстве, для которого $T_{\text{conv}} = 0,1$ мкс. Типичный масштаб времени сходимости на больших расстояниях, $r > 2a$, стремится к времени схождения для свободного пространства. Также есть две области, симметричные относительно НЧ, в которых $\Omega \sim \gamma$ и время схождения стремится к нулю. Такое поведение определяется взаимодействием радиационных и безызлучательных скоростей распада КИ из-за взаимодействия с металлической НЧ и ближним полем.

Функция распределения $p(n, T)$ вероятности излучения n фотонов резонансной флуоресценции КИ в заданный временной интервал T существенно зависит от расположения КИ вокруг НЧ (рис. 13), демонстрируя характерный изгиб в гребнеобразной зависимости. Для выяснения причины этого поворота была вычислена вероятность $p(n)$ при фиксированных параметрах $D = 0$, $\theta = \pi/6$ для разных материалов: для наносферы из идеального металла (рис. 13а) и из серебра (рис. 13б). Из рисунка хорошо видно, что изгиб гребенчатой зависимости $p(n)$ вызван безызлучательной частью скорости распада КИ, связанного с металлической НЧ, что существенно в области $23 \leq r \leq 40$ нм.

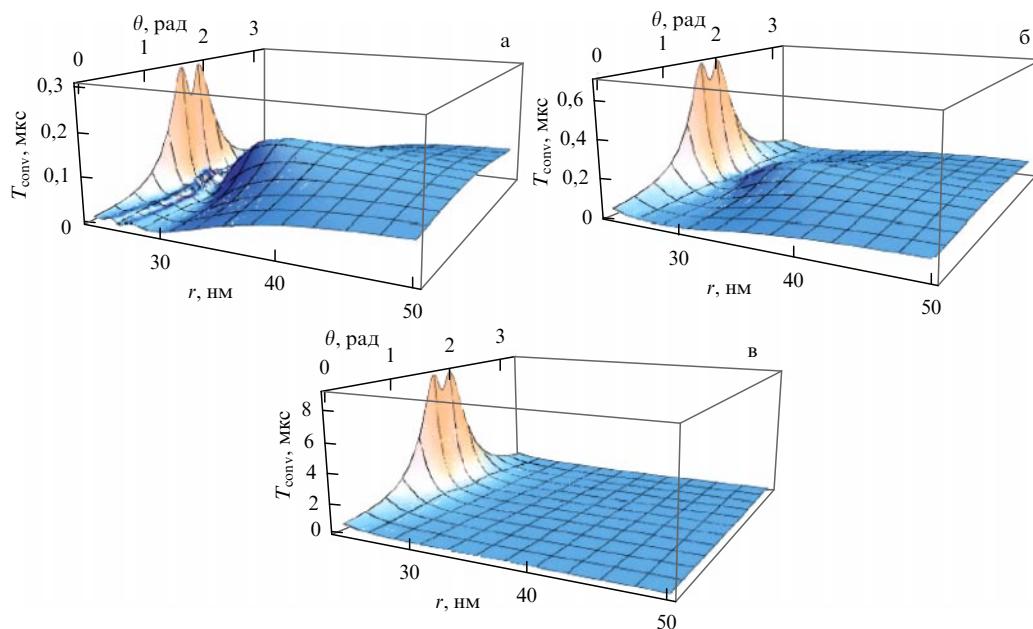


Рис. 12. (В цвете онлайн.) Зависимость времени схождения T_{conv} от координат КИ r и θ вокруг НЧ для нормированной частотной расстройки $D = 0$ (а), $D = 1$ (б) и $D = 5$ (в) при $\Delta\omega_L = 1$ МГц.

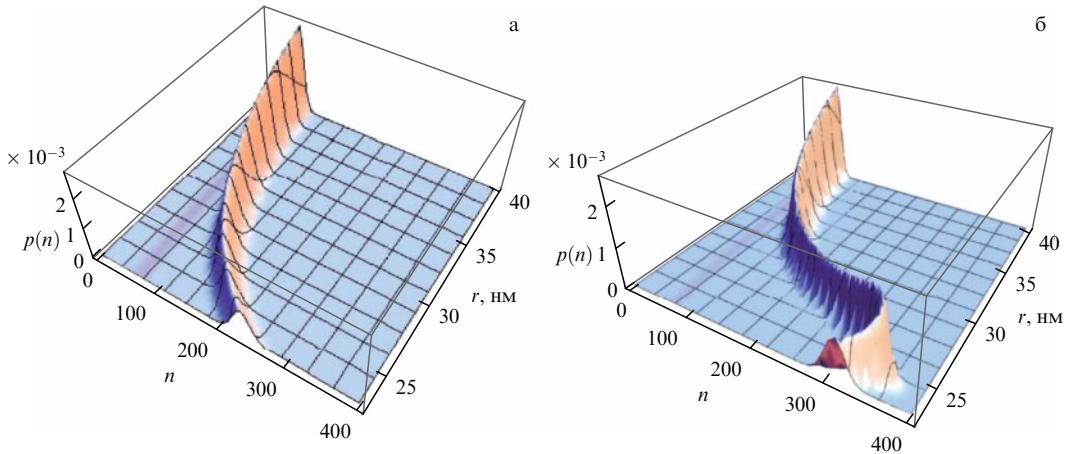


Рис. 13. (В цвете онлайн.) Вероятность $p(n, T)$ в зависимости от координаты r КИ относительно НЧ для случая сферической НЧ с $\varepsilon = -\infty$ (а) и для серебряной НЧ с $\varepsilon = -15.37 + i0.231$ (б) при $\theta = \pi/6$ рад, $T = 9$ мкс, $D = 0$, $\Delta\omega_L = 1$ МГц, $\lambda = 632.8$ нм.

4.3. Антигруппировка фотонов резонансной флуоресценции квантового излучателя

Явление антигруппировки фотонов [152] было теоретически предсказано для флуоресцентного излучения двухуровневого КИ в свободном пространстве, возбуждаемого резонансным лазерным полем, в работах [137, 153, 154] и подтверждено экспериментально [3]. Суть явления состоит в том, что существуют такие состояния электромагнитного поля, для которых $g^{(2)}(0) < g^{(2)}(\tau)$, где $g^{(2)}(\tau)$ — нормированная корреляционная функция второго порядка,

$$g^{(2)}(\mathbf{r}, \tau) = \frac{\langle \hat{\mathbf{E}}^-(\mathbf{r}, t)\hat{\mathbf{E}}^-(\mathbf{r}, t+\tau)\hat{\mathbf{E}}^+(\mathbf{r}, t+\tau)\hat{\mathbf{E}}^+(\mathbf{r}, t) \rangle}{\langle \hat{\mathbf{E}}^-(\mathbf{r}, t)\hat{\mathbf{E}}^+(\mathbf{r}, t) \rangle \langle \hat{\mathbf{E}}^-(\mathbf{r}, t+\tau)\hat{\mathbf{E}}^+(\mathbf{r}, t+\tau) \rangle}, \quad (32)$$

поле предполагается статистически стационарным, не зависящим от начального состояния КИ, т.е. $t \rightarrow \infty$.

Корреляционная функция второго порядка $g^{(2)}(\mathbf{r}, \tau)$ пропорциональна вероятности зарегистрировать два фотона в точке с координатой \mathbf{r} с интервалом времени τ [155, 156]. Таким образом, явление антигруппировки фотонов — неклассическое явление, в котором фотонные пары с временным интервалом $\tau \neq 0$ регистрируются чаще, чем пары с нулевым временным интервалом.

В случае стационарного поля нормированная корреляционная функция второго порядка имеет вид

$$g^{(2)}(\mathbf{r}, \tau) = \frac{[\langle \hat{R}_3(\mathbf{r}, \tau) \rangle_G + 1/2]}{[\langle \hat{R}_3(\mathbf{r}, \tau) \rangle_{ss} + 1/2]}, \quad (33)$$

где индекс G соответствует флуоресцентному излучению КИ, первоначально находящегося в нижнем энергетическом состоянии, индекс ss соответствует стационарному значению ($t \rightarrow \infty$) оператора Паули $\langle \hat{R}_3(\mathbf{r}, \tau) \rangle$.

Спиновый оператор Паули $\langle \hat{R}_3(\mathbf{r}, \tau) \rangle$ для КИ, в начальный момент времени находящегося в нижнем состоянии, имеет вид

$$\begin{aligned} \langle \hat{R}_3(\mathbf{r}, \tau) \rangle_G + \frac{1}{2} &= \frac{(1/4)\Omega^2(1 + \Delta\omega_L/\beta)}{(1/2)\Omega^2(1 + \Delta\omega_L/\beta) + (\beta + \Delta\omega_L)^2 + \beta^2 D^2} - \\ &- \frac{1}{2} \sum_{i=1, i \neq j \neq k}^3 \frac{(2\beta + p_i)[(\beta + \Delta\omega_L + p_i)^2 + \beta^2 D^2] \exp(p_i \tau)}{p_i(p_i - p_j)(p_i - p_k)}, \end{aligned} \quad (34)$$

где $2\beta = \gamma$ — скорость спонтанной релаксации КИ (нерадиационная и радиационная с учётом влияния наноантенны), $D = (\omega_L - \omega_0)/\beta$, $\Delta\omega_L$ — ширина линии падающего на систему КИ–НЧ лазерного излучения, p_i — корни кубического уравнения, $i = 1, 2, 3$,

$$2\beta(\beta + \Delta\omega_L)^2 + 2\beta^3 D^2 + (\beta + D)\Omega^2 = 0. \quad (35)$$

Один из коэффициентов p_i — корней кубического уравнения (35) — является действительным числом, а два других — мнимые комплексно-сопряжённые числа [157]. Выражения для p_i не приводятся из-за их громоздкости.

Соответственно стационарное значение ($t \rightarrow \infty$) $\langle \hat{R}_3(\mathbf{r}, \tau) \rangle$ выражается как

$$\begin{aligned} \left[\langle \hat{R}_3(\mathbf{r}, \tau) \rangle_{ss} + \frac{1}{2} \right] &= \\ &= \frac{(1/4)\Omega^2(1 + \Delta\omega_L/\beta)}{(1/2)\Omega^2(1 + \Delta\omega_L/\beta) + (\beta + \Delta\omega_L)^2 + \beta^2 D^2}. \end{aligned} \quad (36)$$

Таким образом, $g^{(2)}(\mathbf{r}, \tau)$ зависит от напряжённости локального поля, скорости спонтанной релаксации КИ (радиационной и нерадиационной), ширины линии лазерного излучения, отстройки от резонанса в данной точке. Следовательно, $g^{(2)}(\mathbf{r}, \tau)$ зависит от положения КИ относительно наноантенны.

На рисунке 14 представлена корреляционная функция второго порядка $g^{(2)}(\mathbf{r}, \tau)$ для различных значений угла θ , для расстояния до поверхности 10 нм. Видно, что $g^{(2)}(\mathbf{r}, \tau)$ зависит от ширины линии лазера и пренебречь данным параметром нельзя (далее $\Delta\omega_L = 1$ МГц).

На рисунке 15 приведена корреляционная функция для двух значений угла θ при $r = 30$ нм для различных значений отстройки от резонанса. Видно, что $g^{(2)}(\mathbf{r}, \tau)$ зависит от отстройки частоты перехода КИ от резонанса. НЧ влияет на частоту перехода. Это изменение по сравнению с величиной частоты перехода на много порядков меньше, но выражение для $g^{(2)}(\mathbf{r}, \tau)$, как и для спектральной плотности, зависит не от разности частот, а от отношения $(\omega_L - \omega_0)/\beta$, где $2\beta = \gamma$ — скорость спонтанной релаксации КИ (радиационной и нерадиационной). И это отношение не является пренебрежимо малым даже для отстройки от резонанса в несколько МГц.

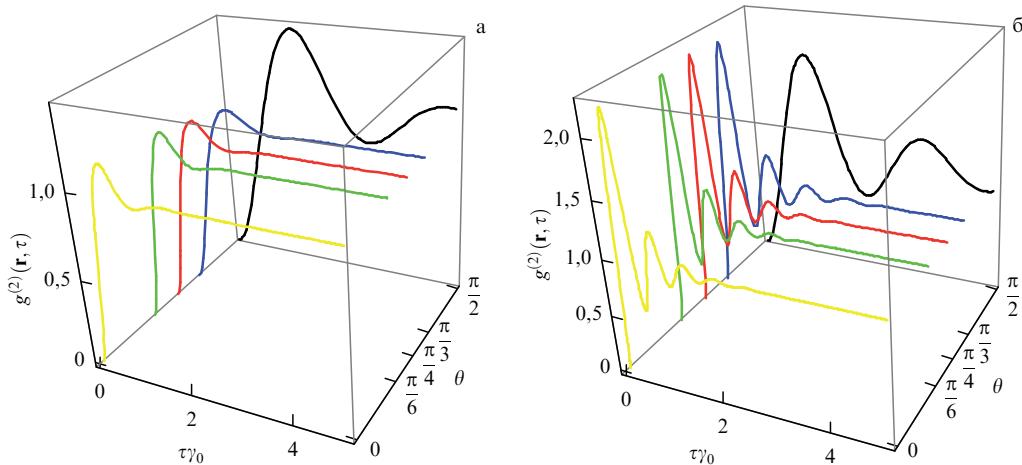


Рис. 14. (В цвете онлайн.) Корреляционная функция второго порядка $g^{(2)}(\mathbf{r}, \tau)$ для различных значений угла θ при расстоянии до поверхности 10 нм в случае нулевой отстройки от резонанса для ширины линии лазера $\Delta\omega_L = 0$ (а) и $\Delta\omega_L = 1$ МГц (б).

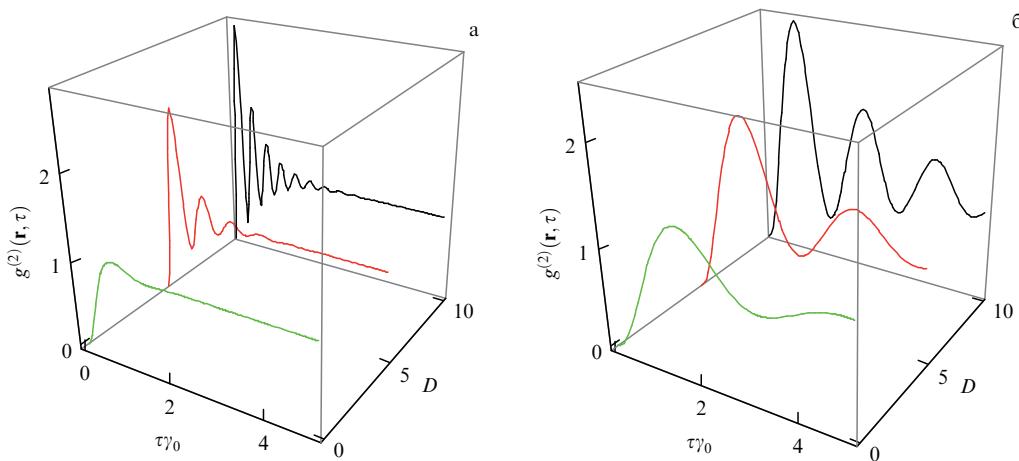


Рис. 15. (В цвете онлайн.) Корреляционная функция второго порядка $g^{(2)}(\mathbf{r}, \tau)$ при $r = 30$ нм для различных значений отстройки от резонанса D при $\theta = \pi/4$ (а) и $\theta = \pi/2$ (б).

Исследования антигруппировки флуоресцентных фотонов в случае трёхуровневого КИ А-типа, находящегося вблизи сферической металлической НЧ, проведены в работе [141]. Авторы рассмотрели случай, когда КИ возбуждается одиночным лазерным полем вдоль одного из оптических переходов. Показано, что сильная антигруппировка флуоресцентных фотонов достигается вдоль второго неуправляемого перехода в А-системе.

В работе [142] теоретически исследована резонансная флуоресценция четырёхуровневого КИ двойного V-типа вблизи плазмонной НЧ. Рассмотрим случай взаимодействия квантовой системы с двумя ортогональными циркулярно поляризованными лазерными полями с одинаковыми частотой и интенсивностью, но с разными фазами. В качестве плазмонной НЧ рассматривался двумерный массив диэлектрических наносфер с металлическим покрытием. Данный КИ демонстрирует квантовую интерференцию при спонтанном излучении вблизи плазмоннойnanoструктуры. Авторы [142] показали, что наличие плазмонной НЧ приводит к сильной модификации как спектра резонансной флуоресценции, так и перехода от антигруппировки к группировке для флуоресцентных фотонов. Кроме того, спектр резонансной флуоресценции и корреляционная функция второго порядка сильно зависят от фазы, так что относительную фазу лазерных

полей можно использовать для эффективного управления характеристиками резонансной флуоресценции.

Теми же авторами в работе [158] исследована статистика излучения двухуровневого КИ вблизи того же двумерного массива диэлектрических наносфер с металлическим покрытием. Показано, что статистика фотонов существенно модифицируется решёткой НЧ. Время перехода от антигруппировки к группировке очень сильно зависит от ориентации КИ относительно решётки, от частоты перехода КИ, напряжённости приложенного электрического поля и геометрических параметров НЧ. В частности, для слабо возбуждённого КИ, дипольный момент которого параллелен плазмонной решётке, характерное время перехода от антигруппировки к группировке фотонов может увеличиваться на два порядка по сравнению с таковым в случае вакуума в свободном пространстве. При более сильном внешнем возбуждении, когда внешняя частота Раби фиксирована, наблюдается уменьшение (или увеличение) времени перехода от антигруппировки к группировке фотонов, когда скорости затухания уменьшаются (или увеличиваются) относительно их значений в вакууме. Кроме того, толщина плазмонных наноболочек может действовать как отдельный управляющий параметр статистики фотонов.

В рассмотренных работах речь шла о единичных КИ. Сейчас всё больше растёт интерес к исследованию свойств света, генерируемого гибридными системами, включающими в себя мезоскопическое количество КИ, для создания макроскопических квантовых источников света. Так, в работе [159] исследуются статистические свойства света, генерируемого набором КИ, связанных с одной электромагнитной модой. Теоретические расчёты на основе эффективного гамильтониана системы выполнены для описания отклика двух различных систем при низкоинтенсивном когерентном возбуждении плазмонных нанополостей и диэлектрических микрополостей. Особое внимание было уделено изучению воздействия, которое эти два типа полостей оказывают на рассеянный свет. Начиная с ансамбля с минимальным числом КИ, равным единице, проанализирована устойчивость антигруппировки фотонов при увеличении размера ансамбля. Для обеих конфигураций резонатора субпуассоновское излучение наблюдается не только на уровне одного КИ, но и для мезоскопических ансамблей, включающих в себя несколько десятков КИ.

Результаты работы показывают, что существует два механизма, приводящих к значительным отрицательным корреляциям во взаимодействии между чисто бозонной подсистемой (резонатором) и квазибозонной (ансамбль КИ): фотонная блокада и деструктивная интерференция. Первая имеет место при большой силе связи (сравнимой со скоростью радиационного излучения резонатора или превышающей её), тогда как вторая становится актуальной при более слабых взаимодействиях резонатор – КИ. Несмотря на отчётливый открытый или закрытый характер этих систем и существенно разные физические параметры, описывающие нанополости и микрополости, феноменологии статистики фотонов для обеих систем удивительно схожи (после нормировки на потери в резонаторе). Этот факт становится более ясным благодаря исследованию спектральнойстройки резонатора – КИ, которая увеличивает диапазон параметров, дающих антигруппированный свет, и временной эволюции корреляций, показывающей медленное (быстрое) затухание антигруппировки фотонной блокады (индуцированной интерференцией).

При рассмотрении систем КИ–НЧ обычно исследуются квантовые свойства излучения КИ, а плазменная НЧ рассматривается как пассивный элемент, который изменяет локальное окружение КИ. Однако в случае сильной связи между НЧ и КИ сама НЧ может излучать свет с квантовыми свойствами. В отличие от НЧ в ситуации, описанной выше, металлическая НЧ сама может излучать свет. При оптическом возбуждении выше начала межзонных переходов наночастицы благородных металлов могут демонстрировать довольно сильную видимую фотолюминесценцию. Имеются экспериментальные свидетельства того, что канал безызлучательной релаксации в таком случае может включать генерацию локализованных поверхностных плазмонов (ЛПП), которые впоследствии излучают свет. Связывание металлической НЧ с КИ может привести к усилению фотолюминесценции металлической НЧ. С другой стороны, ЛПП могут возбуждаться непосредственно либо быстрыми электронами, либо светом, резонансным mode ЛПП. Скорость излучения дипольного ЛПП в металлической НЧ является пропорциональной его объёму и может достигать значений порядка 10^3 ТГц, что на три порядка

больше, чем предельная скорость, ожидаемая для квантовых эффектов, связанных с металлическими nano-структурами.

Изучение квантовых свойств света, излучённого сильно связанный системой металлическая НЧ + КИ, проведено в работе [160]. Показано, что такая система эффективно ведёт себя как двухуровневая и она должна спонтанно излучать свет, который подчиняется субпуассоновской статистике и демонстрирует идеальную антигруппировку. Были рассмотрены два сценария возбуждения: 1) металлическая НЧ возбуждается нерезонансно через взаимодействие с трёхуровневым КИ; 2) система металлическая НЧ + КИ возбуждается резонансно на много ниже насыщения. Обнаружено, что в первом случае скорость однофотонной генерации принципиально ограничивается скоростью безызлучательной релаксации в канале возбуждения. Напротив, последний сценарий рассматривается как простой и многообещающий подход, который может обеспечить частоту повторения однофотонного излучения порядка 100 ТГц и использовать для создания однофотонных источников излучения.

В реальных экспериментах по резонансной флуоресценции широко используется спектральная фильтрация резонансной флуоресценции для улучшения чистоты и неотличимости одиночных фотонов благодаря удалению нежелательного фона. Применение этой техники, безусловно, должно влиять на статистику излучения. В работе [161] показано, что спектр резонансной флуоресценции двухуровневого КИ включает в себя множество линий, каждая из которых демонстрирует различную статистику фотонов. Без фильтрации эти компоненты всегда мешают создать сильную антигруппировку, ожидаемую от одиночных КИ. Однако при спектральной фильтрации с полосой пропускания, сопоставимой с естественной шириной линии или частотой Раби, соотношение этих компонент изменяется в отфильтрованном спектре, что приводит к сильно изменённой статистике фотонов.

В случае слабого резонансного возбуждения подходящий узкий фильтр удаляет почти всю некогерентную составляющую, разрушая антигруппировку и демонстрируя, что субъективная ширина линии и сильная антигруппировка не могут быть измерены одновременно. При сильном резонансном возбуждении заметный эффект группировки наблюдается при полосах пропускания фильтра, сравнимых с естественной шириной линии, прежде чем система в итоге начнёт проявлять тенденцию к пуассоновской статистике для самых узких фильтров. Эти результаты иллюстрируют возможный новый подход к управлению статистикой фотонов квантового света. Таким образом, при фильтрации спектра КИ необходимо соблюдать осторожность, чтобы сохранить антигруппировку.

4.4. Формирование сжатых состояний света

Перейдём к рассмотрению сжатия излучения [152], которое представляет собой сугубо квантовое явление, и покажем, что НЧ может приводить к сжатию флуоресцентного излучения расположенного в её ближнем поле двухуровневого КИ.

Рассмотрим квадратурное сжатие поля флуоресцентного излучения. Введём эрмитовы операторы $\hat{E}_1 = \hat{E}^+ + \hat{E}^-$ и $\hat{E}_2 = -i(\hat{E}^+ - \hat{E}^-)$ для двух компонент вектора

тора напряжённости поля, различающихся по фазе на $\pi/2$. В этом разделе операторы поля будем для простоты рассматривать нормированными на $\omega^2 d / (4\pi\epsilon_0 c^2 |\mathbf{r} - \mathbf{r}_0|)$. Кроме того, допустим, что для каждого положения КИ детектор находится в дальней зоне перпендикулярно дипольному моменту КИ, т.е. $\sin\eta = \pi/2$. Пусть также

$$[\hat{\mathbf{E}}^+, \hat{\mathbf{E}}^-] = C,$$

где C — функция от r и θ , которая с учётом [135, 162, 163] имеет вид

$$C = \frac{(1 + \Delta\omega_L/\beta)^2 + D^2}{Z^2(1 + \Delta\omega_L/\beta) + (1 + \Delta\omega_L/\beta)^2 + D^2}.$$

Тогда соответствующий коммутатор операторов $\hat{\mathbf{E}}_1$ и $\hat{\mathbf{E}}_2$

$$[\hat{\mathbf{E}}_1, \hat{\mathbf{E}}_2] = 2iC.$$

Следовательно, дисперсии величин, соответствующих операторам $\hat{\mathbf{E}}_1$ и $\hat{\mathbf{E}}_2$ [164]:

$$\langle (\Delta\hat{\mathbf{E}}_1)^2 \rangle = C + \langle :(\Delta\hat{\mathbf{E}}_1)^2 : \rangle,$$

$$\langle (\Delta\hat{\mathbf{E}}_2)^2 \rangle = C + \langle :(\Delta\hat{\mathbf{E}}_2)^2 : \rangle,$$

где ":" — нормальное упорядочение.

Таким образом, для нашего случая имеем условие сжатия: $\langle :(\Delta\hat{\mathbf{E}}_1)^2 : \rangle < 0$ или $\langle :(\Delta\hat{\mathbf{E}}_2)^2 : \rangle < 0$. Следует отметить, что не существует классического аналога сжатого состояния. Следовательно, условия сжатия для компонент $\hat{\mathbf{E}}_1$ и $\hat{\mathbf{E}}_2$ соответственно выражаются как

$$\langle :(\Delta\hat{\mathbf{E}}_1)^2 : \rangle = 2\langle \hat{\mathbf{E}}^- \hat{\mathbf{E}}^+ \rangle - (\langle \hat{\mathbf{E}}^+ \rangle + \langle \hat{\mathbf{E}}^- \rangle)^2 < 0, \quad (37)$$

$$\langle :(\Delta\hat{\mathbf{E}}_2)^2 : \rangle = 2\langle \hat{\mathbf{E}}^- \hat{\mathbf{E}}^+ \rangle - (\langle \hat{\mathbf{E}}^+ \rangle - \langle \hat{\mathbf{E}}^- \rangle)^2 < 0. \quad (38)$$

Учитывая, что $\hat{\mathbf{E}}^+ \sim \hat{\sigma}^-$ и $\hat{\mathbf{E}}^- \sim \hat{\sigma}^+$, а также воспользовавшись выражениями для $\langle \hat{\sigma}^+ \hat{\sigma}^- \rangle$, $\langle \hat{\sigma}^+ \rangle$, $\langle \hat{\sigma}^- \rangle$ (где σ^+ , σ^- — атомные повышающий понижающий операторы соответственно), которые в стационарном состоянии имеют вид [135, 162, 163]

$$\langle \hat{\sigma}^+ \hat{\sigma}^- \rangle = \frac{(1/4)\Omega^2(1 + \Delta\omega_L/\beta)}{(1/2)\Omega^2(1 + \Delta\omega_L/\beta) + (\beta + \Delta\omega_L)^2 + \beta^2 D^2},$$

$$\langle \hat{\sigma}^+ \rangle = \frac{(1/2)(\Omega/\beta)[i(1 + \Delta\omega_L/\beta) - D]}{(1/2)(\Omega^2/\beta^2)(1 + \Delta\omega_L/\beta) + (1 + \Delta\omega_L/\beta)^2 + D^2},$$

$$\langle \hat{\sigma}^- \rangle = (\langle \hat{\sigma}^+ \rangle)^*,$$

получим для $\langle :(\Delta\hat{\mathbf{E}}_1)^2 : \rangle$ и $\langle :(\Delta\hat{\mathbf{E}}_2)^2 : \rangle$ выражения:

$$\langle :(\Delta\hat{\mathbf{E}}_1)^2 : \rangle = \frac{Z^4(1 + \Delta\omega_L/\beta)^2 + Z^2(1 + \Delta\omega_L/\beta)^3 + Z^2D^2(1 + \Delta\omega_L/\beta) - 2Z^2D^2}{(Z^2(1 + \Delta\omega_L/\beta) + (1 + \Delta\omega_L/\beta)^2 + D^2)^2}, \quad (39)$$

$$\langle :(\Delta\hat{\mathbf{E}}_2)^2 : \rangle = \frac{Z^4(1 + \Delta\omega_L/\beta)^2 + Z^2(1 + \Delta\omega_L/\beta)^3 + Z^2D^2(1 + \Delta\omega_L/\beta) - 2Z^2(1 + \Delta\omega_L/\beta)^2}{(Z^2(1 + \Delta\omega_L/\beta) + (1 + \Delta\omega_L/\beta)^2 + D^2)^2}, \quad (40)$$

где $Z = \sqrt{2}\Omega/\gamma$. Таким образом, условия сжатия для $\hat{\mathbf{E}}_1$ и $\hat{\mathbf{E}}_2$:

$$Z^2 \left(1 + \frac{\Delta\omega_L}{\beta}\right)^2 + \left(1 + \frac{\Delta\omega_L}{\beta}\right)^3 + D^2 \left(1 + \frac{\Delta\omega_L}{\beta}\right) - 2D^2 < 0, \quad (41)$$

$$Z^2 \left(1 + \frac{\Delta\omega_L}{\beta}\right) + \left(1 + \frac{\Delta\omega_L}{\beta}\right)^2 + D^2 - 2 \left(1 + \frac{\Delta\omega_L}{\beta}\right) < 0. \quad (42)$$

Несложно показать, что неравенства (41) и (42) несогласны.

В соответствии с (41) сжатие флуоресцентного излучения для $\hat{\mathbf{E}}_1$ не происходит, если возбуждающее поле полностью резонансно, т.е. $D = 0$. Действительно, предположим, что $D = 0$. Для $\hat{\mathbf{E}}_1$ имеем

$$Z^2 + \left(1 + \frac{\Delta\omega_L}{\beta}\right) < 0.$$

Данное неравенство неверно, так как все члены левой части неотрицательны. Для $\hat{\mathbf{E}}_2$ находим

$$Z^2 + \frac{\Delta\omega_L}{\beta} < 1.$$

Отсюда следует, что $\Omega < \gamma$ — затухание (скорость спонтанной релаксации) слишком велико и в данном случае в спектре флуоресценции будет только один центральный пик, соответствующий упруго рассеяному фотону.

В работе [165] рассмотрено сжатие флуоресцентного излучения, но ширина линии возбуждающего

поля не принималась во внимание. Полученные для случая $\Delta\omega_L \neq 0$ результаты (41) и (42) полностью согласуются с результатами работы [165] при $\Delta\omega_L = 0$.

На рисунке 16 представлены зависимости нормированной на C величины $\langle :(\Delta\hat{\mathbf{E}}_1)^2 : \rangle$ от положения КИ вблизи наносферы при $D = 10$ для разных значений $\Delta\omega_L$ в присутствии наносферы. Видно, что при увеличении ширины линии лазера эффект сжатия излучения для компоненты поля $\hat{\mathbf{E}}_1$ исчезает. Это непосредственно следует из (41).

На рисунке 17 показана зависимость нормированной на C $\langle :(\Delta\hat{\mathbf{E}}_1)^2 : \rangle$ для случая КИ в присутствии и в отсутствие наносферы для отстройки $D = 10$. Видно, что в отсутствие наносферы при данных параметрах падающего излучения флуоресцентное излучение несжатое. Благодаря наличию наносферы сжатие происходит вблизи её поверхности. Из полученных результатов (39) и (40) видно, что сжатие сложным образом зависит от частоты Раби Ω и от скорости спонтанной релаксации γ , которые в свою очередь зависят от положения КИ относительно сферической НЧ.

Также существуют работы, рассматривающие различные квантовые эффекты в системах КИ–набор НЧ. В частности, эффекты квантовой когерентности и интерференции в КИ вблизи НЧ исследованы в работе [166], где продемонстрированы образование тёмных состояний, оптическая накачка, когерентное комбинационное рассеяние и STIRAP (STImulated Raman Adiabatic Passage) в присутствии металлических НЧ. Показано, что тёмные состояния образуются, но имеют более сложную структуру в присутствии НЧ, а оптическая накачка и

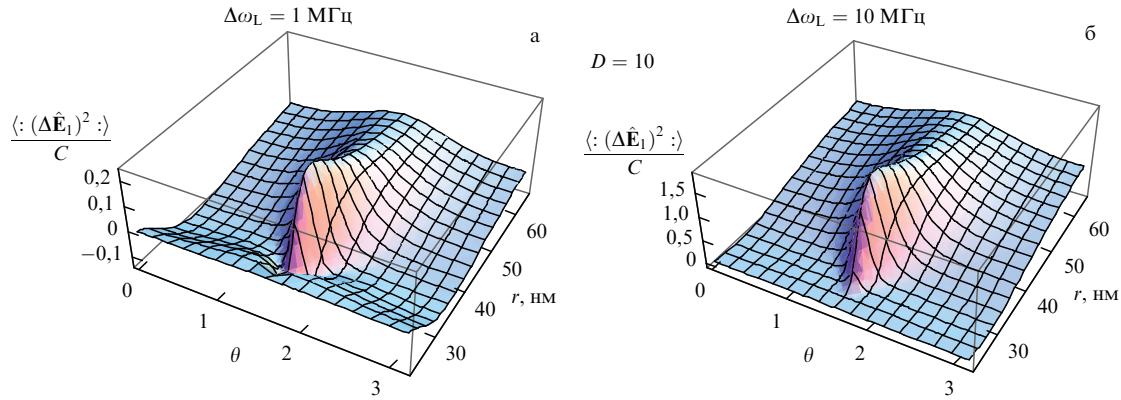


Рис. 16. (В цвете онлайн.) Зависимость нормированной на C величины $\langle (\Delta \hat{E}_1)^2 \rangle$ от положения КИ при $D = 10$ для $\Delta \omega_L = 1$ МГц (а) и $\Delta \omega_L = 10$ МГц (б) в присутствии сферической НЧ.

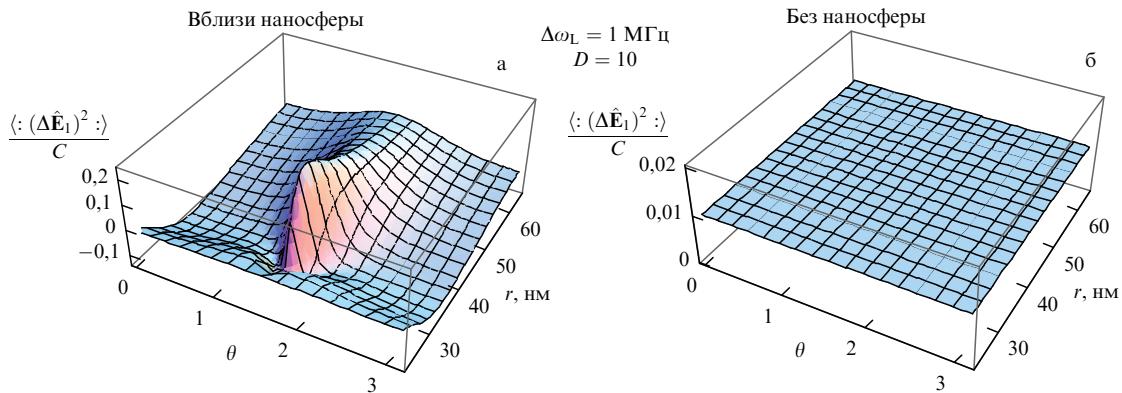


Рис. 17. (В цвете онлайн.) Зависимость нормированной на C величины $\langle (\Delta \hat{E}_1)^2 \rangle$ от положения КИ при $D = 10$ в присутствии НЧ (а) и в отсутствие НЧ (б).

STIRAP не могут использоваться вблизи НЧ. Метод STIRAP следует применять с осторожностью, поскольку он может не работать или, по крайней мере, имеет новые функции в присутствии НЧ.

В работе [167] рассмотрена система, состоящая из металлических НЧ и набора КИ (рис. 18). В случае слабой связи между КИ и НЧ возникает хорошо известное явление тушения флуоресценции, в этом режиме электромагнитные моды рассматриваются как квазиконтинуум. Показано, что концепция тушения нарушается, когда возникает сильная связь между КИ и электромагнитными модами НЧ. В этом пределе высшие мультипольные моды больше не могут рассматриваться как квазиконтинуум, а описание с помощью псевдомод становится более подходящим. Используя численное и аналитическое моделирование, авторы [167] продемонстрировали, что картина тушения в случае слабой связи сильно трансформируется при переходе к режиму сильной связи. В то время как в пределе слабой связи безызлучательные электромагнитные моды НЧ действуют как эффективный термостат для излучения КИ, при переходе в режим сильной связи они становятся псевдомодой, способной обратимо обмениваться энергией с КИ. Передача энергии происходит между каждым излучателем и локализованной псевдомодой и, следовательно, не является кооперативным эффектом. Однако, когда количество КИ увеличивается, коллективная сильная

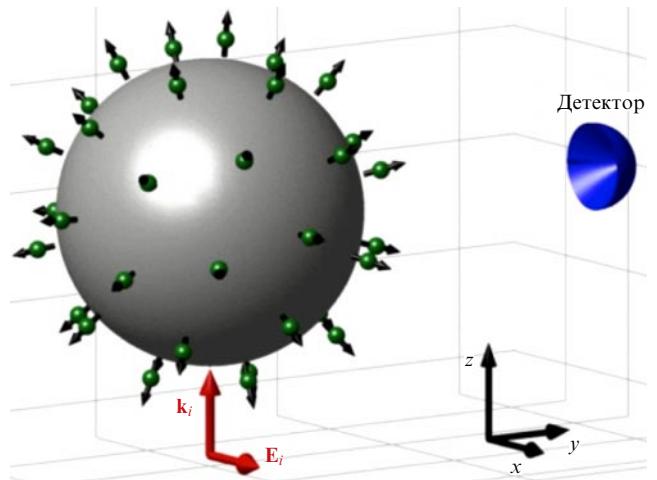


Рис. 18. (В цвете онлайн.) Схема исследуемой системы: металлическая НЧ окружена набором равномерно распределенных в сферической оболочке КИ, имеющих радиальную ориентацию диполей.

связь многих КИ с излучательной дипольной модой НЧ возрастает даже на очень малых расстояниях.

Очевидным развитием является рассмотрение всё более сложныхnanoструктур. Так, в работе [168] теоретически исследовано взаимодействие КТ и НЧ ядро–двойная оболочка (рис. 19) в рамках полностью кван-

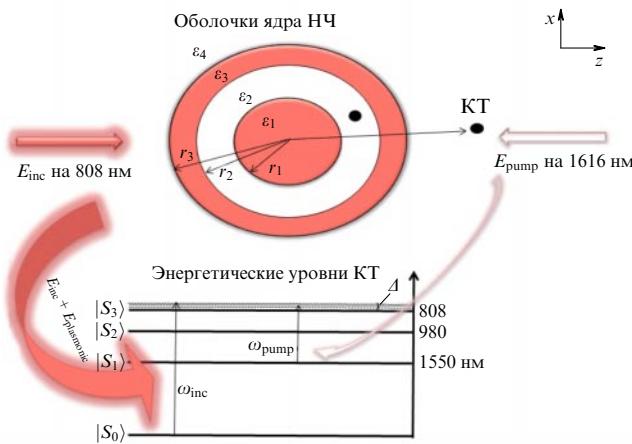


Рис. 19. (В цвете онлайн.) Схема взаимодействия КТ и НЧ со структурой матрёшки с двумя встречными пучками лазерного излучения на частотах 808 и 1616 нм.

тowego подхода. Рассмотрена возможность управления спонтанным излучением КТ, расположенных вблизи таких частиц и внутри них (в оболочках). Показано, что НЧ вида ядро – двойная оболочка, в отличие от простых НЧ без оболочек, обеспечивают переключение насыщения поглощения между НЧ и КТ. Особенно этот эффект выражен, когда КТ помещены внутрь оболочки. Такие системы представляют интерес для создания квантово-плазмонных датчиков.

Также представляют интерес работы, в которых рассматриваются НЧ из специальных материалов. Например, в работе [169] теоретически исследованы оптические свойства димера НЧ на основе топологического изолятора – КИ, взаимодействующего в режиме сильной связи. Топологически защищённые (поверхностные) состояния влияют на оптические свойства НЧ на основе топологического изолятора (НТИ), демонстрируя, что под действием света одиничный электрон в таком состоянии создаёт поверхностную плотность заряда, подобно плазмону в металлической НЧ. Кроме того, такой электрон может действовать как экранирующий слой, эффективно подавляя поглощение внутри НЧ, и может связывать фононы и свет, вызывая ранее не зарегистрированную топологическую поляритонную моду (ТПМ) НЧ. Авторы [169] теоретически исследовали поведение

этой моды в случае, когда НТИ сильно взаимодействует с одиночным КИ, путём расчёта спектра системы. В частности, показано, что ТПМ является сильно связанный с резонансом КИ, вызывая гибридную моду, выходной сигнал которой, а также его спектральное положение можно в первую очередь настроить, управляя размером НТИ (рис. 20), расстоянием между НЧ и КИ.

Когерентное взаимодействие между КИ и фотонными модами в резонаторах лежит в основе многих современных стратегий, направленных на создание фотонных квантовых состояний и управление ими. Плазмонная нанополость обеспечивает успешное решение для уменьшения эффективных объёмов мод до нанометрового масштаба, но пространственный контроль на атомном уровне связи с одним молекулярным КИ является сложной задачей. Авторы [170] экспериментально продемонстрировали субнанометровый пространственный контроль над когерентной связью между отдельной молекулой и плазмонной нанополостью, расположенными в непосредственной близости друг от друга, отслеживая эволюцию форм линий Фано и фотонных лэмбовских сдвигов в спектрах туннельной электронно-индукционной люминесценции. Эволюция провалов Фано позволяет определить эффективное расстояние взаимодействия, которое исходя из экспериментальных данных равно 1 нм. Причём сила связи достигает величины около 15 мэВ и гигантское самовзаимодействие вызывает фотонный лэмбовский сдвиг до ~ 3 мэВ. Эти результаты открывают новые возможности для управления квантовой интерференцией и взаимодействием поля с веществом на наномасштабе.

4.5. Генерация запутанных квантовых состояний

Для приложений, использующих квантовые запутанные состояния, желательно, чтобы такие состояния, будучи созданными, существовали достаточно долго [171–173]. Результаты многих работ, тем не менее, показывают, что диссипативные процессы в системе и связанные с ними декогеренции являются серьёзным препятствием для сохранения запутанности. Однако это интуитивно понятное утверждение оказывается ошибочным, когда речь идёт о генерации запутанности связыванием кубиков с общей диссипативной средой. Такие схемы чрезвычайно привлекательны с практической точки зрения, поскольку они позволяют достичь запутывания независимо от начального состояния системы и, как было

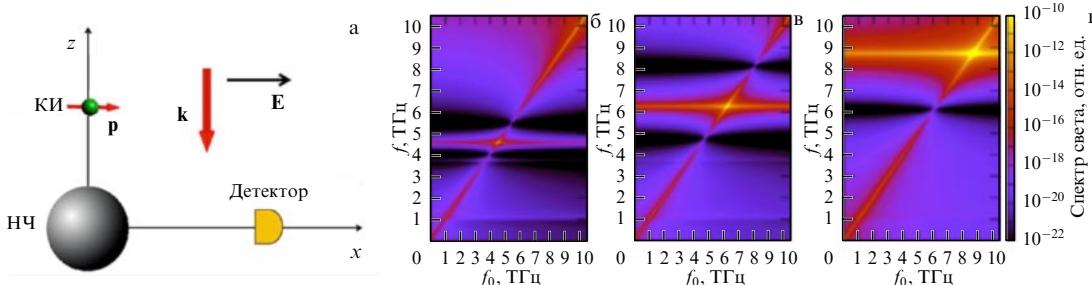


Рис. 20. (В цвете онлайн.) (а) Установка для наблюдения спектра. Димер НТИ (Bi₂Se₃) – КИ освещается нормально падающим полем. Детектор размещается на очень большом расстоянии, чтобы улавливать только компоненты дальнего поля света. (б–г) Спектры исследуемой гибридной системы для НТИ радиусом 30 нм (б), 20 нм (в), 10 нм (г). Связь между поляритоном ТПМ и резонансом КИ усиливается и смещается в сторону больших частот с уменьшением размера НЧ. Выходной сигнал сопряжения (середина области избегаемого пересечения), а также его спектральное положение могут быть настроены простым управлением размерами НЧ (предполагается, что система находится в воздухе).

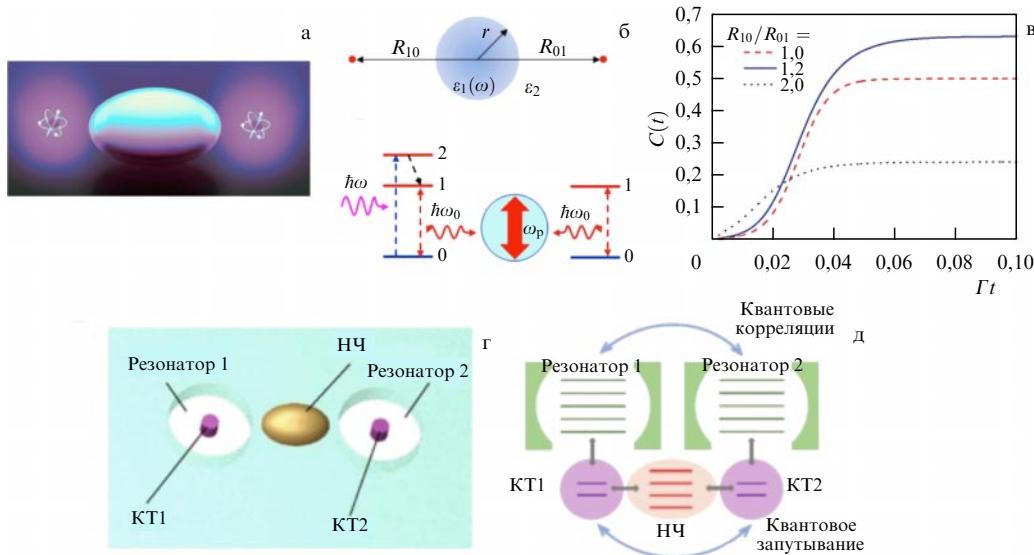


Рис. 21. (В цвете онлайн.) (а) Схема системы, исследуемой в работе [179]: два кубита (атомы, молекулы или КТ) располагаются вблизи оптическойnanoантенны в форме эллипсоида (учитывается только электрический дипольный момент nanoантенны). (б) Схема системы, исследуемой в работе [180]. (в) Степень совпадения как функция нормированного времени для различных соотношений расстояний КИ – НЧ. (г) Схема системы, исследованной в работе [181], (д) её графическое представление: двухуровневые квантовые точки связаны с плазмонными модами и модами фотонного резонатора.

показано, достаточно устойчивы к изменениям управляющих параметров. В качестве таких диссипативных сред могут выступать металлические НЧ.

Первоначально в качестве подобных наноструктур рассматривались металлические нанопроволоки. В них возбуждаются поверхностные плазмон-поляритоны, которые распространяются вдоль нанопроволок. В такой геометрии квантовые состояния кубитов, когда в качестве кубитов выступают КТ, атомы или даже молекулы, могут быть запутаны, если их поднести вплотную к нанопроволоке. Для идентичных кубитов максимальная степень запутанности может быть получена выбором подходящей относительной силы связи с нанопроволокой. В такой схеме достигается многочастичная запутанность между кубитами и плазмонами, за которой следует измерение количества плазмонных возбуждений на концах нанопроволоки. Только в случае, когда плазмоны не обнаружены, можно сделать вывод, что кубиты были максимально запутаны друг с другом.

Чтобы обойти этот вероятностный характер получения запутанных состояний и создать высокую степень запутанности в детерминированных схемах, было предложено размещать кубиты асимметрично относительно нанопроволоки. При определенных значениях силы связи максимальная степень запутывания может быть достигнута независимо от состояния плазмонного поля [174, 175]. Однако большие потери, связанные с распространением поверхностных плазмонов, не позволяют сохранить запутанность в течение длительных периодов времени.

Идея использования каналов потерь для перевода кубитов в субизлучательное состояние, устойчивое к диссипации, изучена в работе [176]. Описанный сценарий позволяет добиться стационарного запутывания. Для этого требуется, чтобы система изначально была приведена в заранее определенное состояние, и, более того, результирующая запутанность остается значительно ниже максимально возможной.

Недавно была также предложена схема генерации запутанности, устойчивой к потерям, с волноводом, состоящим из цепочки металлических НЧ [177], в то же время наноразмерные оптические решетки были предложены для управления взаимодействием удаленных ультрахолодных атомов через их взаимодействие с коллективными плазмонными модами [178].

Однако ни одна из описанных выше схем не может обеспечить максимальную стационарную запутанность пары кубитов детерминированным образом. Для её достижения предложено использовать сильно диссипативные системы.

Наряду с работами, в которых рассматривалось распространение поверхностных плазмонных поляритонов в металлических волноводах, существуют работы, в которых рассматривается изолированная металлическая nanoантенна как диссипативная структура. Так, в [179] предлагается схема для создания максимально запутанного состояния между двумя кубитами за счет диссипативно управляемого процесса. Для этого запутываются квантовые состояния кубитов, которые взаимно связаны плазмонной nanoантенной (рис. 21а). При наложении слабой спектральной асимметрии в свойствах кубитов устанавливаясь вероятность получить максимально запутанное субизлучательное состояние приближается к единице. Это происходит, несмотря на высокие потери, связанные с плазмонной nanoантенной, которые обычно считаются вредными. Авторы [179] показали, что схема перепутывания достаточно устойчива к изменениям частот переходов КТ и отклонениям в их предписанном положении относительно nanoантенны, а максимальная запутанность может быть получена с помощью симметричной константы связи.

Похожая система исследовалась в работе [180]. Здесь два одинаковых КИ помещены около сферической металлической НЧ. Частота дипольного плазмонного резонанса совпадает с частотой излучательного перехода КИ (рис. 21б). Была предложена схема, в которой два КИ

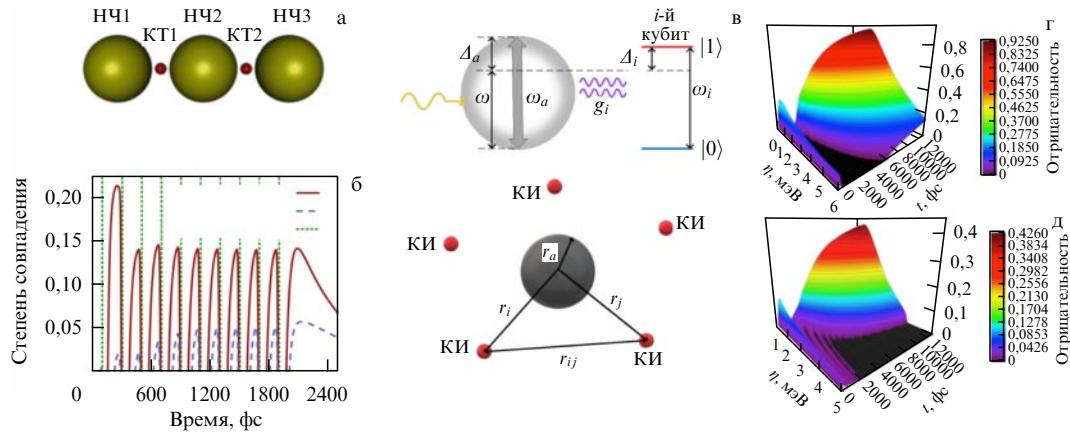


Рис. 22. (В цвете онлайн.) (а) Схема системы, исследуемой в работе [183]. (б) Степень совпадения как функция времени для системы из трёх КТ и плазмоннойnanoструктуры. (в) Исследованная в работе [185] система, состоящая из нескольких кубитов вблизи наносферы, параметры системы приведены на рисунке. Кубиты, количество которых можно регулировать, находятся на фиксированной плоскости, проходящей через центр наносферы. Отрицательность как функция времени и управляющего поля двухкубитовой системы, когда управляющее поле равно нулю (г), и трёхкубитовой системы, когда управляющее поле велико (> 5 МэВ) (д). Начальные состояния устанавливаются равными $|100\rangle$, управляющее поле находится в резонансе с плазмонной модой.

резонансно связаны с дипольным плазмонным резонансом НЧ, причём только один КИ изначально возбуждён. В такой схеме можно формировать стабильное когерентное суперпозиционное состояние значительно быстрее, чем спонтанное излучение изолированного КИ. В этом суперпозиционном состоянии ненулевые дипольные моменты КИ не совпадают по фазе друг с другом, так что полное электрическое поле, действующее на НЧ, исчезает, устраняя тем самым диссиацию энергии (т.е. поглощение поля в НЧ) и значительно увеличивая время жизни запутанного состояния. Показано, что степень стационарной запутанности зависит только от отношения расстояний между КИ и НЧ, достигая максимального значения 0,65, когда расстояние между НЧ и первоначально возбуждённым КИ больше на 20 %, чем расстояние от другого КИ до НЧ (рис. 21в).

Особенность рассматриваемого процесса заключается в том, что, несмотря на ненулевую диссиацию в системе КИ – НЧ – КИ (из-за поглощения излучения НЧ), установившаяся запутанность остаётся постоянной в течение времени, намного большего, чем характерное время системы, до тех пор пока не начнётся гораздо более медленный процесс спонтанного излучения.

В работе [181] рассмотрена похожая система, состоящая из двух кубитов с КТ, связанных с общей затухающей модой поверхностных плазмонов, однако в отличие от КТ в схеме, предложенной в работе [180], каждая КТ также связана с отдельной модой фотонного резонатора (рис. 21г). КТ и плазмоны возбуждаются лазерным импульсом длительностью 20 фс. Запутанность КТ, определяемая как степень совпадения по Буттерсу, может быть обнаружена измерением корреляционной функции $g^{(2)}(\tau)$ фотона резонатора и сохраняться в высокодобротных оптических резонаторах.

Аналогичный подход, в котором временная корреляционная функция второго порядка может использоваться в качестве признака наличия запутанности между парой кубитов, связанных с общей плазмонной nanoструктурой, аналитически и численно рассматривался в работе [182].

Дальнейшее развитие связано с увеличением числа КИ и НЧ в рассматриваемых системах. В работе [183]

рассматриваются две, три и четыре КТ вблизи плазмонной nanoсистемы, состоящей из металлических НЧ (рис. 22а), распространение на произвольное число КТ изучено в работе [184]. Предложена система, в которой управление взаимодействием между запутываемыми КТ и диссипативной средой (плазмонной системой) определяется наноразмерной геометрией системы, а единственным требованием к внешним параметрам является сверхбыстрый лазерный импульс (одиночный или повторяющийся).

В отличие от схем, основанных на плазмонных волноводах, которые могут запутывать пространственно разделённые КТ, но ограничиваются двумя КТ, предложенная схема позволяет создавать и поддерживать запутывание между всеми парами КТ, когда две, три и т.д. близко расположенные КТ соединены с общей плазмонной nanoструктурой. Более того, в такой схеме вся система изначально находится в основном состоянии и возбуждается общим лазерным импульсом или серией импульсов.

Во всех случаях большая степень совпадения достигается только в течение короткого периода после возбуждения лазерным импульсом системы, прежде чем заселённость запутанного состояния распадётся. Тем не менее запутанность может быть восстановлена после применения повторной серии импульсов, как показано для системы из трёх КТ на рис. 22б. Изменение степени связи между каждой КТ и плазмонной nanoструктурой позволяет генерировать возбуждённое состояние, которое самопроизвольно развивается в сторону запутанного состояния за счёт диссиации плазмонов. Запутанность достигается без необходимости индивидуальной адресации к КТ.

Также динамика двух кубитов, расположенных вблизи плазмонной nanoструктуры в виде двумерной решётки из диэлектрических НЧ, покрытых металлом, рассматривалась в работе [186]. Каждый из кубитов локально, независимо от другого, взаимодействует с плазмонной nanoструктурой. В работе рассмотрены два случая: две идентичные двухуровневые системы и две идентичные трёхуровневые системы V-типа, в которых один двухуровневый переход играет роль кубита, а другой

уровень действует как вспомогательный. В качестве плазмонной наноструктуры была взята двумерная решётка из диэлектрических НЧ, покрытых металлом. Наличие этой наноструктуры может приводить к сильно подавленным скоростям спонтанного излучения отдельных квантовых систем, а также к сильно анизотропным скоростям спонтанного распада для ортогональных дипольных матричных элементов из-за анизотропного эффекта Парселя, который приводит к квантовой интерференции в спонтанном излучении. Оба эффекта можно использовать для сильного изменения динамики запутанности системы.

Большинство работ по диссипативно-управляемой запутанности ограничивается двумя кубитами, а много-кубитная запутанность из-за вычислительной сложности исследуется крайне мало. В работе [185] рассмотрена схема с большим числом КТ, расположенных в одной плоскости вокруг сферической плазмонной НЧ. Поскольку число кубитов велико, количество комбинаций управляющих параметров увеличивается экспоненциально. Таким образом, при моделировании многокубитной запутанности параметры управления обычно устанавливаются симметричными для разных кубитов. Однако предыдущие исследования показывают, что асимметрия управляющих параметров, особенно асимметричная отстройка, играет важную роль в двухкубитной системе, а следовательно, и при многокубитной запутанности асимметричная отстройка также играет важную роль.

Авторы предложили эффективную модель многокубитной системы, позволяющую снизить вычислительную сложность задачи. Масштабируемая плазмонная система, состоящая из мультикубита и диссипативной НЧ, предназначена для генерации многокубитной диссипативно-управляемой запутанности (рис. 22в). Численное моделирование плазмонной системы с помощью

эффективной модели показывает, что установившаяся запутанность, вызванная ненулевой асимметричной отстройкой, значительно больше, чем при резонансе. Кроме того, количество пар кубитов с антисимметричной отстройкой играет важную роль в увеличении запутанности, а максимальная запутанность получается соответствующим комбинированием параметров управления. Аналитические и численные расчёты показали, что внезапное исчезновение запутанности, а затем её возрождение происходят, когда управляющее поле достаточно велико (> 5 МэВ) (рис. 22д), в качестве критерия запутанности выбрана отрицательность [187].

Важно отметить, что на настоящий момент прямые экспериментальные наблюдения запутанности в таких системах являются крайне сложной задачей, поэтому все исследования сосредоточены в основном в теоретической области.

5. Заключение

Мы рассмотрели эффекты квантовой оптики КИ в ближнем поле НЧ. Описаны механизмы модификации скоростей радиационного и нерадиационного распада в простейшей модели двухуровневого КИ вблизи плазмонной НЧ, а также проанализировано распределение интенсивности и поляризации ближнего поля вокруг НЧ. Это распределение имеет сложную структуру, которая существенным образом зависит от поляризации внешнего поля излучения и параметров плазмонных резонансов НЧ. Также проанализированы эффекты квантовой оптики в системе (НЧ + КИ) + внешнее лазерное поле: модификация спектра резонансной флуоресценции КИ в ближнем поле, явления группировки/антингруппировки и квантовой статистики фотонов в спектре, формирование сжатых состояний

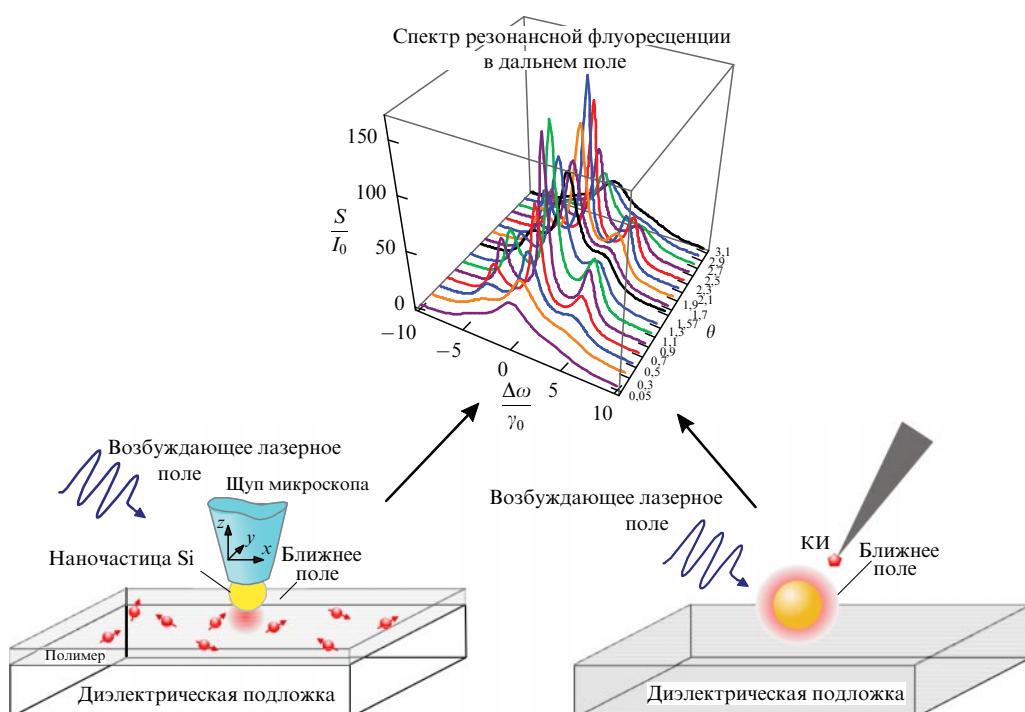


Рис. 23. (В цвете онлайн.) Схема двух возможных экспериментов по измерению параметров (интенсивности и поляризации) ближнего поля НЧ посредством регистрации спектра резонансной флуоресценции КИ, взаимодействующего с НЧ, в дальнем поле.

света, квантовые запутанные состояния в таких системах.

Исследования по указанным направлениям активно развиваются из года в год, однако из-за сложности экспериментов большая их часть является теоретической. Развитие экспериментальных возможностей нанофотоники, тем не менее, не стоит на месте, и можно надеяться, что в ближайшие годы эти исследования будут всё активнее переходить в экспериментальную плоскость.

Опишем схематически возможные эксперименты по изучению свойств ближнего поля системы КИ + НЧ путём регистрации и последующего анализа спектров резонансной флуоресценции КИ в дальнем поле (рис. 23). В первом из них (рис. 23, слева) ближнее поле вокруг НЧ может быть измерено с помощью КИ (флуоресцентные молекулы или КТ), внедрённых в полимерную пленку, нанесённую на диэлектрическую подложку. НЧ прикреплена к игле (щупу) микроскопа, который можно расположить в непосредственной близости от одного из КИ. Система КИ + НЧ возбуждается падающим лазерным излучением с необходимой поляризацией [72, 74]. Измеряя затем спектр резонансной флуоресценции КИ в дальней зоне, можно получить информацию как об интенсивности, так и о поляризации ближнего поля в той точке пространства, где находится КИ [131].

Альтернативный эксперимент может быть проведён с диэлектрической НЧ, расположенной над диэлектрической подложкой или на ней, что реализуется в эксперименте [42, 43]: КИ (например, наноалмаз с NV-центром) может быть встроен в щуп, который можно расположить вокруг НЧ с высокой точностью [46]. Спектр резонансной флуоресценции этого КИ, измеренный в дальней зоне, даст подробную информацию об интенсивности и поляризации ближнего поля в точке, где находится КИ (рис. 23, справа).

Отличная от этих экспериментов стратегия трёхмерного поляризационного картирования заключается в следующем. НЧ помещается в вязкую жидкость, содержащую флуоресцентные молекулы (КИ), которые медленно опускаются в жидкости под действием гравитации (или плавно поднимаются под действием равномерного нагрева). КИ, движущиеся вокруг НЧ, регистрируются в одной из поляризационно-чувствительных схем с применением наноскопии одиночных молекул, которая позволяет точно определять ориентацию молекулы в пространстве [47].

Выделим также те направления, которые актуальны и, безусловно, будут активно развиваться в ближайшем будущем. Среди них — исследования, связанные со взаимодействием структурированного света с хиральнымиnanoструктурами [188–193] и диэлектрическими НЧ с высоким показателем преломления [194–197]. Отметим также экспериментальные исследования интерференционных эффектов, возникающих при взаимодействии НЧ и КИ. Одним из них является так называемый эффект невидимости (cloaking) [198]. Из обычной оптики хорошо известно, что макроскопические объекты отбрасывают тень в пучке света и тень становится темнее, если среду сделать оптически толще. Этот сценарий также сохраняется и на наномасштабе, когда размер объекта меньше длины волн света. Например, золотая НЧ диаметром менее 100 нм может гасить более половины мощности лазерного пучка, если помещена в фокус.

Согласно закону Бера–Ламберта, эта тень становится экспоненциально темнее по мере добавления большего количества частиц. На практике металлическую НЧ можно сделать практически невидимой при освещении её светом, установив на пути светового пучка в правильном положении КИ, резонансный частоте падающего света.

Авторы признательны за финансовую поддержку Российским фондом фундаментальных исследований в рамках проекта № 19-12-50258, а также В.В. Климову, Б.С. Лукьянчуку, Г. Лейксу, П. Банзеру, Е.Д. Чубчеву и В.М. Пастухову за многочисленные обсуждения результатов данной работы.

Список литературы

1. Tame M S et al. *Nat. Phys.* **9** 329 (2013)
2. Diedrich F, Walther H *Phys. Rev. Lett.* **58** 203 (1987)
3. Short R, Mandel L *Phys. Rev. Lett.* **51** 384 (1983)
4. Kimble H J, Dagenais M, Mandel L *Phys. Rev. Lett.* **39** 691 (1977)
5. Gaponenko S V *Introduction to Nanophotonics* (New York: Cambridge Univ. Press, 2010)
6. Liu Z et al. *Metamaterials* **2** 45 (2008)
7. Hatab N A et al. *Nano Lett.* **10** 4952 (2010)
8. Nien L-W et al. *J. Phys. Chem. C* **117** 25004 (2013)
9. Purcell E M, Torrey H C, Pound R V *Phys. Rev.* **69** 37 (1946)
10. Krasnok A E et al. *Nanoscale* **6** 7354 (2014)
11. Alù A, Engheta N *Nat. Photon.* **2** 307 (2008)
12. Engheta N *Science* **317** 1698 (2007)
13. Guo R et al. *Nano Lett.* **15** 3324 (2015)
14. Koenderink A F *Nano Lett.* **9** 4228 (2009)
15. Nayak P K et al. *Nat. Rev. Mater.* **4** 269 (2019)
16. Владимирова Ю В и др. *Вестн. МГУ Сер. 3. Физ. Астрон.* (6) 99 (2018); Vladimirova Yu V et al. *Moscow Univ. Phys. Bull.* **73** 678 (2018)
17. Dennler G et al. *J. Mat. Res.* **20** 3224 (2005)
18. Wang G et al. *ACS Sustainable Chem. Eng.* **2** 1331 (2014)
19. Cheng P, Li Y, Zhan X *Energy Environment. Sci.* **7** 2005 (2014)
20. West J L, Halas N J *Annu. Rev. Biomed. Eng.* **5** 285 (2003)
21. Tam F et al. *Nano Lett.* **7** 496 (2007)
22. Hirsch L R et al. *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* **100** 13549 (2003)
23. Loo C et al. *Nano Lett.* **5** 709 (2005)
24. O'Neal D P et al. *Cancer Lett.* **209** 171 (2004)
25. Kim K et al. *Small* **8** 892 (2012)
26. Wertz E et al. *Nano Lett.* **15** 2662 (2015)
27. Краснок А Е и др. УФН **183** 561 (2013); Krasnok A E et al. *Phys. Usp.* **56** 539 (2013)
28. Климов В В УФН **178** 875 (2008); Klimov V V *Phys. Usp.* **51** 839 (2008)
29. Лепешов С И и др. УФН **188** 1137 (2018); Lepeshov S I et al. *Phys. Usp.* **61** 1035 (2018)
30. Novotny L, van Hulst N *Nat. Photon.* **5** 83 (2011)
31. Hernandez F E, in *Reviews in Plasmonics 2010* (Ed. C D Geddes) (New York: Springer, 2012) p. 185
32. Novotny L A, Hecht B *Principles of Nano-Optics* (New York: Cambridge Univ. Press, 2012)
33. Maier S A *Plasmonics: Fundamentals and Applications* (New York: Springer, 2007)
34. Климов В В *Наноплазмоника* (М.: Физматлит, 2009)
35. Klimov V V *Nanoplasmonics* (Singapore: Pan Sanford Publ., 2014)
36. Boltasseva A, Atwater H A *Science* **331** 290 (2011)
37. Boriskina S V et al. *Adv. Opt. Photon.* **9** 775 (2017)
38. Mohamed M B et al. *Chem. Phys. Lett.* **317** 517 (2000)
39. Baffou G, Quidant R *Laser Photon. Rev.* **7** 171 (2013)
40. Baranov D G et al. *Optica* **4** 814 (2017)
41. Mie G *Ann. Physik* **330** 377 (1908)
42. Feng T et al. *ACS Photon.* **5** 678 (2018)
43. Zambrana-Puyalto X, Bonod N *Phys. Rev. B* **91** 195422 (2015)
44. Mandel L, Wolf E *Optical Coherence and Quantum Optics* (Cambridge: Cambridge Univ. Press, 1995); Пер. на русск. яз.: Мандель Л, Вольф Э *Оптическая когерентность и квантовая оптика* (М.: Наука, 2000)

45. Bohren C F, Huffman D R, in *Absorption and Scattering of Light by Small Particles* (Eds C F Bohren, D R Huffman) (Weinheim: Wiley-VCH, 1998) p. 544
46. Klimov V V, Ducloy M, Letokhov V S *J. Mod. Opt.* **43** 549 (1996)
47. Li L-W, Kang X-K, Leong M-S *Spheroidal Wave Functions in Electromagnetic Theory* (New York: John Wiley and Sons, 2002)
48. Falloon P E "Theory and computation of spheroidal harmonics with general arguments", Master Thesis (Pert: The Univ. of Western Australia, 2001)
49. Войтович Н Н, Лфценеленбаум Б З, Сивов А Н *Обобщенный метод собственных колебаний в теории дифракции* (М.: Наука, 1977)
50. Войтович Н Н, Каценеленбаум Б З, Сивов А Н *УФН* **118** 709 (1976); Voitovich N N, Katsenelenbaum B Z, Sivov A N *Sov. Phys. Usp.* **19** 337 (1976)
51. Chubchev E D, Vladimirova Yu V, Zadkov V N *Opt. Express* **22** 20432 (2014)
52. Chubchev E D, Vladimirova Yu V, Zadkov V N *Laser Phys. Lett.* **12** 015302 (2015)
53. Setälä T et al. *Phys. Rev. E* **66** 016615 (2002)
54. Grigoriev K S et al. *Phys. Rev. A* **98** 063805 (2018)
55. Kumar G V P J. *Nanophoton.* **6** 064503 (2012)
56. Владимирова Ю В, Павлов А А, Задков В Н *Вестн. МГУ Сер. 3. Физ. Астрон.* (6) 49 (2017); Vladimirova Yu V, Pavlov A A, Zadkov V N *Moscow Univ. Phys. Bull.* **72** 544 (2017)
57. Reshetov S A et al. *EPJ Web Conf.* **132** 03006 (2017)
58. Vladimirova Yu V et al. *Phys. Rev. A* **100** 023847 (2019)
59. Kuznetsov N Yu et al. *Opt. Express* **28** 27293 (2020)
60. Alferov Zh I *Rev. Mod. Phys.* **73** 767 (2001)
61. Wu D et al. *Chem. Soc. Rev.* **46** 7105 (2017)
62. Stehr F et al. *Nat. Commun.* **10** 1268 (2019)
63. Ray S, Widom J R, Walter N G *Chem. Rev.* **118** 4120 (2018)
64. Ecker J R et al. *Neuron* **96** 542 (2017)
65. Andersen C M, Mortensen G J. *Agric. Food Chem.* **56** 720 (2008)
66. Fothergill S M, Joyce C, Xie F *Nanoscale* **10** 20914 (2018)
67. Koenderink A F *Opt. Lett.* **35** 4208 (2010)
68. Sauvan C et al. *Phys. Rev. Lett.* **110** 237401 (2013)
69. Bitton O, Gupta S N, Haran G *Nanophotonics* **8** 559 (2019)
70. Klimov V V, Letokhov V S, Ducloy M *Phys. Rev. A* **56** 2308 (1997)
71. Клинов В В, Летохов В С *ЖЭТФ* **111** 44 (1997); Klimov V V, Letokhov V S *J. Exp. Theor. Phys.* **84** 24 (1997)
72. Klimov V V, Ducloy M, Letokhov V S *J. Mod. Opt.* **44** 1081 (1997)
73. Klimov V V, Ducloy M, Letokhov V S *Phys. Rev. A* **59** 2996 (1999)
74. Haroche S, in *Fundamental Systems in Quantum Optics: Les Houches, Session LIII* (Eds J Dalibard, J-M Raimond, J Zinn-Justin) (Amsterdam: North-Holland, 1992) p. 767
75. Klimov V V, Ducloy M *Phys. Rev. A* **69** 013812 (2004)
76. Клинов В В *УФН* **173** 1008 (2003); Klimov V V *Phys. Usp.* **46** 979 (2003)
77. Wylie J M, Sipe J E *Phys. Rev. A* **30** 1185 (1984)
78. Wylie J M, Sipe J E *Phys. Rev. A* **32** 2030 (1985)
79. Dung H T, Knöll L, Welsch D-G *Phys. Rev. A* **62** 05380 (2000)
80. Knoll L, Scheel S, Welsch D-G, quant-ph/0006121
81. Yeung M S, Gustafson T K *Phys. Rev. A* **54** 5227 (1996)
82. Drexhage K H *Ber. Bunsenges. Phys. Chem.* **20** 1176 (1966)
83. Goy P et al. *Phys. Rev. Lett.* **50** 1903 (1983)
84. Kleppner D *Phys. Rev. Lett.* **47** 233 (1981)
85. Andrew P, Barnes W L *Science* **290** 785 (2000)
86. Pohl D W, in *Near-Field Optics. Principles and Applications, Proceedings of the Second Asia-Pacific Workshop, Beijing, China, 20–23 October 1999* (Eds X Zhu, M Ohatsu) (Singapore: World Scientific, 2000) p. 9
87. Anger P, Bharadwaj P, Novotny L *Phys. Rev. Lett.* **96** 113002 (2006)
88. Kühn S et al. *Phys. Rev. Lett.* **97** 017402 (2006)
89. Girard C et al. *Chem. Phys. Lett.* **404** 44 (2005)
90. Koenderink A F *ACS Photon.* **4** 710 (2017)
91. Sullivan K G, Hall D G *J. Opt. Soc. Am. B* **14** 1149 (1997)
92. Amos R M, Barnes W L *Phys. Rev. B* **55** 7249 (1997)
93. Chance R R, Prock A, Silbey R, in *Advances in Chemical Physics* Vol. 37 (Eds I Prigogine, S A Rice) (New York: John Wiley, 1978) p. 1
94. Wu S-T, Eberlein C *Proc. R. Soc. Lond. A* **455** 2487 (1999)
95. Chew H J. *Chem. Phys.* **87** 1355 (1987)
96. Klimov V V, Ducloy M, Letokhov V S *J. Mod. Opt.* **43** 2251 (1996)
97. Каценеленбаум Б З *ЖТФ* **19** 1182 (1949)
98. Nha H, Jhe W *Phys. Rev. A* **56** 2213 (1997)
99. Enderlein J *Chem. Phys. Lett.* **301** 430 (1999)
100. Żakowicz W, Janowicz M *Phys. Rev. A* **62** 013820 (2000)
101. Klimov V V, Ducloy M *Phys. Rev. A* **62** 043818 (2000)
102. Klimov V V, Ducloy M, Letokhov V S *Eur. Phys. J. D* **20** 133 (2002)
103. Klimov V V, Ducloy M, Letokhov V S *Chem. Phys. Lett.* **358** 192 (2002)
104. Клинов В В *Письма в ЖЭТФ* **68** 610 (1998); Klimov V V *JETP Lett.* **68** 641 (1998)
105. Клинов В В, Первентцев Я А *Квантовая электроника* **29** 9 (1999); Klimov V V, Perventsev Ya A *Quantum Electron.* **29** 847 (1999)
106. Zijlstra P, Paulo P, Orrit M *Nat. Nanotechnol.* **7** 379 (2012)
107. Kinkhabwala A et al. *Nat. Photon.* **3** 654 (2009)
108. Punj D et al. *Nat. Nanotechnol.* **8** 512 (2013)
109. Karamlou A, Trusheim M E, Englund D *Opt. Express* **26** 3341 (2018)
110. Guzatov D V, Klimov V V, Pikhota M Yu *Laser Phys.* **20** 85 (2010)
111. Guzatov D V, Klimov V V *Chem. Phys. Lett.* **412** 341 (2005)
112. Guzatov D V, Klimov V V *New J. Phys.* **13** 053034 (2011)
113. Klimov V V, Guzatov D V *Appl. Phys. A* **89** 305 (2007)
114. Curto A G et al. *Science* **329** 930 (2010)
115. Aouani H et al. *Nano Lett.* **11** 2400 (2011)
116. Langguth L et al. *ACS Nano* **7** 8840 (2013)
117. Belacel C et al. *Nano Lett.* **13** 1516 (2013)
118. Mohtashami A et al. *ACS Photon.* **1** 1134 (2014)
119. Hoang T B, Akselrod G M, Mikkelsen M H *Nano Lett.* **16** 270 (2016)
120. Krasnok A E et al. *Opt. Express* **20** 20599 (2012)
121. Rolly B, Stout B, Bonod N *Opt. Express* **20** 20376 (2012)
122. Rusak E et al. *Appl. Phys. Lett.* **105** 221109 (2014)
123. Regmi R et al. *Nano Lett.* **16** 5143 (2016)
124. Bouchet D et al. *Phys. Rev. Appl.* **6** 064016 (2016)
125. Wang H et al. *ACS Nano* **9** 436 (2015)
126. Klimov V V, Guzatov D V *Phys. Rev. B* **75** 024303 (2007)
127. Клинов В В, Гузатов Д В *Квантовая электроника* **37** 209 (2007); Klimov V V, Guzatov D V *Quantum Electron.* **37** 209 (2007)
128. Sun S et al. *J. Phys. Chem. C* **121** 12871 (2017)
129. Sun S et al. *J. Phys. Chem. C* **123** 21150 (2019)
130. Sun S et al. *J. Phys. Chem. C* **122** 14771 (2018)
131. Vladimirova Yu V et al. *Phys. Rev. A* **85** 053408 (2012)
132. Апанасевич П А *Оптика и спектроскопия* **14** 324 (1963)
133. Апанасевич П А *Оптика и спектроскопия* **16** 387 (1964)
134. Newstein M C *Phys. Rev.* **167** 89 (1968)
135. Mollow B R *Phys. Rev.* **188** 1969 (1969)
136. Walther H, in *Advances in Atomic, Molecular and Optical Physics* Vol. 51 (Ed. H H Stroke) (Amsterdam: Elsevier, 2005) p. 239
137. Kimble H J, Mandel L *Phys. Rev. A* **13** 2123 (1976)
138. Klimov V V, Letokhov V S, Ducloy M *Laser Phys.* **17** 912 (2007)
139. Андрианов Е С и др. *Письма в ЖЭТФ* **97** 522 (2013); Andrianov E S et al. *JETP Lett.* **97** 452 (2013)
140. Trügler A, Hohenester U *Phys. Rev. B* **77** 115403 (2008)
141. Carreño F et al. *Phys. Rev. A* **94** 013834 (2016)
142. Carreño F et al. *Phys. Rev. A* **95** 043825 (2017)
143. Sanchez-Munoz C, Gonzalez-Tudela A, Tejedor C *Phys. Rev. B* **85** 125301 (2012)
144. Sadeghi S M *Appl. Phys. Lett.* **101** 213102 (2012)
145. Ge R-C et al. *Phys. Rev. B* **87** 205425 (2013)
146. Sadeghi S M *Phys. Rev. A* **88** 013831 (2013)
147. Slowik K et al. *Phys. Rev. B* **88** 195414 (2013)
148. Theuerholz T S et al. *Phys. Rev. B* **87** 245313 (2013)
149. Fang W et al. *Phys. Rev. A* **93** 053831 (2016)
150. Astafiev O et al. *Science* **327** 840 (2010)
151. Pastukhov V V, Vladimirova Yu V, Zadkov V N *Phys. Rev. A* **90** 0638310 (2014)
152. Смирнов Д Ф, Трошин А С *УФН* **153** 233 (1987); Smirnov D F, Troshin A S *Sov. Phys. Usp.* **30** 851 (1987)
153. Carmichael H J, Walls D F *J. Phys. B* **9** L43 (1976)
154. Cohen-Tannoudji C, in *Frontiers in Laser Spectroscopy, Les Houches, Session XXVII, 1975* (Eds R Balian, S Haroche, S Liberman) (Amsterdam: North-Holland, 1977) p. 1
155. Glauer R J *Phys. Rev.* **130** 2529 (1963)

156. Glauber R J *Phys. Rev.* **131** 2766 (1963)
157. Abramowitz M, Stegun I A (Eds) *Handbook of Mathematical Functions, with Formulas, Graphs, and Mathematical Tables* (New York: Dover Publ., 1965) Sec. 3.8.2
158. Carreño F et al. *Phys. Rev. A* **100** 023802 (2019)
159. Sáez-Blázquez R et al. *Phys. Rev. A* **98** 013839 (2018)
160. Bordo V G *Phys. Rev. A* **100** 063807 (2019)
161. Phillips C L et al. *Phys. Rev. Lett.* **125** 043603 (2020)
162. Kimble H J, Mandel L *Phys. Rev. A* **15** 689 (1977)
163. Walls D F *J. Phys. B* **13** 2001 (1980)
164. Mandel L *Phys. Rev. Lett.* **49** 136 (1982)
165. Walls D F, Zoller P *Phys. Rev. Lett.* **47** 709 (1981)
166. Dhayal S, Rostovtsev Yu V *Phys. Rev. A* **93** 043405 (2016)
167. Delga A et al. *Phys. Rev. Lett.* **112** 253601 (2014)
168. Ahmad S *Phys. Rev. A* **94** 043819 (2016)
169. Chatzidakis G D, Yannopapas V *Phys. Rev. B* **101** 165410 (2020)
170. Zhang Y et al. *Nat. Commun.* **8** 15225 (2017)
171. Reilly D J *npj Quantum Inf.* **1** 15011 (2015)
172. Pan J-W et al. *Rev. Mod. Phys.* **84** 777 (2012)
173. Баргатин И В, Гришанин Б А, Задков В Н УФН **171** 625 (2001); Bargatin I V, Grishanin B A, Zadkov V N *Phys. Usp.* **44** 597 (2001)
174. Chen G-Y, Li C-M, Chen Y-N *Opt. Lett.* **37** 1337 (2012)
175. Jin X R, Gao J *Opt. Lett.* **38** 2110 (2013)
176. Martín-Cano D et al. *Phys. Rev. B* **84** 235306 (2011)
177. Lee C et al. *New J. Phys.* **15** 083017 (2013)
178. Gullans M et al. *Phys. Rev. Lett.* **109** 235309 (2012)
179. Hou J et al. *Phys. Rev. B* **89** 235413 (2014)
180. Nerkararyan K V, Bozhevolnyi S I *Phys. Rev. B* **92** 045410 (2015)
181. Otten M, Gray S K, Kolmakov G V *Phys. Rev. A* **99** 032339 (2019)
182. Dumitrescu E, Lawrie B *Phys. Rev. A* **96** 053826 (2017)
183. Otten M et al. *Phys. Rev. B* **92** 125432 (2015)
184. Otten M et al. *Phys. Rev. A* **94** 022312 (2016)
185. Tang W et al. *Phys. Rev. B* **100** 165415 (2019)
186. Iliopoulos N et al. *Phys. Rev. B* **96** 075405 (2017)
187. Vidal G, Werner R F *Phys. Rev. A* **65** 032314 (2002)
188. Lodahl P et al. *Nature* **541** 473 (2017)
189. De Leon I et al. *Sci. Rep.* **5** 13034 (2015)
190. Guzatov D V, Klimov V V *Phys. Rev. A* **98** 013823 (2018)
191. Guzatov D V, Klimov V V *New J. Phys.* **14** 123009 (2012)
192. Климов В В, Гузатов Д В УФН **182** 1130 (2012); Климов В В, Гузатов Д В *Phys. Usp.* **55** 1054 (2012)
193. Климов В В, Гузатов Д В, в *Singular and Chiral Nanoplasmonics* (Eds S V Boriskina, N I Zheludev) (Singapore: Pan Sanford Publ., 2014) p. 121
194. Woźniak P, Banzer P, Leuchs G *Laser Photon. Rev.* **9** 231 (2015)
195. Zambrana-Puyalto X et al. *ACS Photon.* **5** 2936 (2018)
196. Bauer T et al. *Appl. Phys. Lett.* **106** 091108 (2015)
197. Klimov V *Opt. Lett.* **45** 4300 (2020)
198. Zirkelbach J et al. *Phys. Rev. Lett.* **125** 103603 (2020)

Quantum optics of quantum emitters in the near field of a nanoparticle

Yu.V. Vladimirova^(1,2,a), V.N. Zadkov^(2,3,b)

⁽¹⁾ Lomonosov Moscow State University, Department of Physics, Quantum Technology Center,
Leninskie gory 1, str. 35, 119991 Moscow, Russian Federation

⁽²⁾ National Research University Higher School of Economics, Department of Physics,
ul. Staraya Basmannaya 21/4, str. 5, 105066 Moscow, Russian Federation

⁽³⁾ Institute of Spectroscopy, Russian Academy of Sciences, ul. Fizicheskaya 5, 108840 Troitsk, Moscow, Russian Federation
E-mail: ^(a)yu.vladimirova@physics.msu.ru, ^(b)zadkov@isan.troitsk.ru

This review is devoted to studies of quantum optics effects for quantum emitters (QEs) in the near field of nanoparticles (NPs). In the simple model of a two-level QE located near a plasmon NP, we analyze the mechanisms for modifying the radiative and nonradiative decay rates and discuss the distribution of the near-field intensity and polarization around the NP. This distribution has a complex structure, being significantly dependent on the polarization of the external radiation field and on the parameters of NP plasmon resonances. The quantum optics effects in the system (NP + QE + external laser field) are analyzed, including the near-field modification of the resonance fluorescence spectrum of a QE, the bunching/antibunching effects and photon quantum statistics effects in the spectrum, the formation of squeezed light states, and quantum entangled states in such systems.

Keywords: nanophotonics, nanoplasmonics, nanostructure, quantum emitter, two-level system, quantum optics, resonance fluorescence, antibunching and quantum statistics of photons, squeezed states, quantum entangled states

PACS numbers: **42.50.-p, 42.79.-e, 78.67.-n**

Bibliography — 198 references

Received 19 August 2020, revised 13 January 2021

Uspekhi Fizicheskikh Nauk **192** (3) 267–293 (2022)

Physics – Uspekhi **65** (3) (2022)

DOI: <https://doi.org/10.3367/UFNr.2021.02.038944>

DOI: <https://doi.org/10.3367/UFNe.2021.02.038944>