

На правах рукописи

Лозинг Наталья Анатольевна

Квантово-кинетическая теория фотолюминесценции в приложении
к описанию ансамблей примесных центров в твердых средах с
использованием метода Боголюбова-Борна-Грина-Кирквуда-Ивона

Специальность 1.3.6 - Оптика

АВТОРЕФЕРАТ

диссертации на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

Москва – 2022

Работа выполнена в Федеральном государственном бюджетном учреждении науки Институте спектроскопии Российской академии наук (ИСАН) и в Федеральном государственном автономном образовательном учреждении высшего образования «Национальный исследовательский университет «Высшая школа экономики»

Научный руководитель:

кандидат физико-математических наук
Гладуш Максим Геннадьевич

Научный консультант:

доктор физико-математических наук, член-корреспондент РАН
Наумов Андрей Витальевич

Официальные оппоненты:

Калачев Алексей Алексеевич, доктор физико-математических наук, член-корреспондент РАН, директор Федерального государственного бюджетного учреждения науки «Федеральный исследовательский центр «Казанский научный центр Российской академии наук» (ФИЦ КазНЦ РАН)

Соколов Игорь Михайлович, доктор физико-математических наук, профессор, профессор Высшей школы фундаментальных физических исследований Физико-механического института федерального государственного бюджетного образовательного учреждения высшего образования «Санкт-Петербургский политехнический университет Петра Великого» (ФГАОУ ВО «СПбПУ»)

Ведущая организация:

Федеральное государственное бюджетное образовательное учреждение высшего образования «Московский государственный университет имени М.В. Ломоносова»

Защита состоится «20» марта 2023 г. в 10:00 часов на заседании диссертационного совета 24.1.262.01 на базе Физического института им. П.Н. Лебедева РАН по адресу: 119991, г. Москва, Ленинский проспект, д. 53.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке Физического института им. П.Н. Лебедева РАН, а также на сайте института www.lebedev.ru.

Автореферат разослан «___» _____ 2023 г.

Ученый секретарь

диссертационного совета 24.1.262.01,
доктор физико-математических наук

Золотько Александр Степанович

Общая характеристика работы

В диссертации исследуются характеристики фотолюминесценции как процесса излучательной релаксации коллективных систем квантовых частиц, находящихся в поле непрерывного лазерного возбуждения. Производится анализ особенностей коллективного взаимодействия частиц внутри ансамбля и обусловленных этими взаимодействиями оптических свойств в зависимости от параметров внешнего возбуждения, собственных параметров излучателей и характеристик среды-носителя, в которой они размещены. В работе рассматриваются два частных случая коллективных ансамблей: малые ансамбли, состоящие из двух неидентичных квантовых излучателей и большие ансамбли идентичных частиц, распределённых внутри диэлектрической среды. Для теоретического описания этих двух случаев предлагается оригинальный подход, позволяющий согласованным и самодостаточным образом исследовать эволюцию атомноподобных систем и производить расчет их оптических спектров с учетом коллективных эффектов, состоящих, главным образом, в возникновении диполь-дипольных взаимодействий на различных масштабах. В данной работе развивается квантово-кинетический формализм, основанный на решении согласованных уравнений для материальной и полевой подсистем, получаемых из цепочки уравнений Боголюбова-Борна-Грина-Кирквуда-Ивона (ББГКИ) для одночастичных матриц плотности и многочастичных корреляционных операторов. Из системы уравнений ББГКИ выводится основное кинетическое уравнение – «кооперативное управляющее уравнение» для матрицы плотности излучателя или системы излучателей, которое определяет особенности процесса фотолюминесценции. Управляющее уравнение представляет собой одно уравнение из системы связанных уравнений, и является зависимым от остальной части цепочки уравнений ББГКИ. Эта оставшаяся часть зависит от матриц плотности излучателей и обеспечивает расчет полной интенсивности фотолюминесценции и спектра излучения. Данный метод является наиболее полным и последовательным подходом к изучению систем многих частиц. Главным его преимуществом является возможность изучения свойств отдельных частиц под влиянием самосогласованного поля, создаваемого всей системой и внешним возбуждением.

Актуальность исследования

Излучение света за счет фотолюминесценции коллективных систем атомных или молекулярных частиц было предметом обширных исследований в квантовой оптике и смежных областях в течение нескольких десятилетий. Ансамбли излучателей света, взаимодействующие с внешним излучением, могут проявлять кооперативные эффекты, проявляющиеся в фотолюминесценции [1]. Впервые исследования в этой области были произведены Дике [2], который показал, что спонтанный распад возбужденных состояний ансамбля атомов, расположенных на расстоянии друг от друга, меньшем длины волны излучения, может происходить коллективно вследствие самонаводящихся корреляций между частицами в ансамбле в процессе распада. Далее было показано, что коллективное поведение в этом и во многих других случаях является результатом диполь-дипольного межчастичного взаимодействия. Кроме изменения динамики спонтанного распада, диполь-дипольное взаимодействие вызывает новые резонансы в спектрах излучения и поглощения [3–8], что связано с возможностью одновременного возбуждения атомов, а также обменом возбуждениями [3,9,10]. Также проявляются явления сверх- и субизлучения [11–18], которые следуют из образования запутанных симметричных и антисимметричных собственных состояний, которые представляют собой соответственно быстро и медленно затухающие коллективные возбуждения.

Рост интереса к кооперативным эффектам в малых ансамблях был вызван достижениями в области спектроскопии одиночных излучателей, таких как одиночные органические молекулы [19,20], квантовые точки [21], ионы [22]. Эти достижения позволили различать в пространстве с субволновым разрешением и характеризовать две и более флуоресцирующих частицы. Наблюдение за одиночными квантовыми излучателями достигло очень высокой эффективности и точности вскоре после того, как стало возможной регистрацией бесфоновых линий [23]. В большинстве случаев бесфоновые линии можно обнаружить и зарегистрировать только при низких температурах, когда колебательные возбуждения достаточно «заморожены», а излучатели можно рассматривать как квазидвухуровневые системы с яркой флуоресценцией. О демонстрации диполь-дипольного взаимодействия двух органических молекул в тонких пленках при низких температурах сообщалось в [7] и [8]. В этих работах приводятся измеренные спектры возбуждения фотолюминесценции

пары органических молекул с тремя выраженными максимумами (резонансами с длиной волны возбуждающего лазера). В то же время разрабатываются новые методы измерения малых расстояний с высокой точностью. Например, новый экспериментальный метод прямого измерения расстояния (до 20-10 нм) между двумя полупроводниковыми коллоидными квантовыми точками на флуоресцентных изображениях был описан в [24–26]. Кроме того, развитие технологий приготовления образцов для исследования позволяет управлять частицами и размещать их в одно-, двух- и трехмерных структурах на микро- и нано-масштабах. В настоящее время практикуются применение множества различных по физической природе методов удержания небольших групп излучателей в рамках желаемой геометрии. Например, это ионы в магнитооптических ловушках [18-19], искусственные атомы в оптоволокне [29], квантовые точки в пленках [30] и т.д. Таким образом, для обеспечения дальнейшего прогресса в области спектроскопии и микроскопии одиночных излучателей требуется развитие теоретического описания кооперативных ансамблей квантовых излучателей с целью определения специфических свойств их фотолюминесценции, свидетельствующих о наличии процессов взаимодействия излучателей друг с другом и с окружением.

Система из двух связанных источников света является частным случаем кооперативного ансамбля. На сегодняшний день пары органических молекул и полупроводниковых квантовых точек считаются одними из предпочтительных кандидатов для создания самых маленьких, наиболее теоретически изученных и стабильных кооперативных систем. Было проведено множество исследований динамики, запутывания и флуоресценции парных излучателей (см., например, [31]). Начиная с первых работ [32] и [33], наибольшее количество публикаций было посвящено изучению кооперативного спонтанного распада. Помимо этих работ существуют также исследования, посвященные изучению кооперативных пар при наличии непрерывного возбуждения [34–36]. Однако, несмотря на долгую историю исследований, все развитые теории имеют ограничения или не учитывают важных обстоятельств, неизбежно определяемых экспериментальными условиями. Значительная часть исследований была сосредоточена на частных случаях, что позволяло либо получить аналитические выражения, либо смоделировать конкретную ситуацию. Так, в работах [6,37] были рассчитаны общая интенсивность

флуоресценции, спектры флуоресценции и корреляционные функции для случаев бегущей и стоячей волн возбуждения, но при этом был рассмотрен только случай двух одинаковых атомов и исследовались только частные варианты геометрии взаимодействия частиц с возбуждением. Таким образом, несмотря на множество исследований, полного теоретического исследования пары излучателей в непрерывном лазерном поле в произвольной геометрии для неоднородных излучателей проведено не было.

Для плотных ансамблей большого числа частиц характерны иные кооперативные явления. Например, одним из видов кооперативных явлений в присутствии непрерывного внешнего возбуждения является безрезонаторная (полностью внутренняя) оптическая бистабильность. Бистабильностью ансамбля квантовых излучателей во внешнем поле называется ситуация, когда при одних и тех же внешних параметрах могут реализоваться два значения населенностей возбужденных состояний. Этот эффект проявляется следующим образом. При адиабатическом увеличении интенсивности возбуждения интенсивность люминесценции плавно увеличивается, затем, при достаточной мощности падающего поля, происходит резкий скачок выходящей интенсивности. Если же затем плавно уменьшать интенсивность падающего поля, то значение интенсивности излучения будет плавно уменьшаться и при определенном значении интенсивности возбуждения произойдет резкий спад интенсивности излучения. Таким образом, наблюдаются «переключения» интенсивности излучения между его малым и большим значениями. Возможность возникновения оптической бистабильности в отсутствие внешней обратной связи впервые обсуждалась как результат межатомного взаимодействия (диполь-дипольного) [38]. Эта идея была далее развита в ряде работ [39–41]. Это явление основано на кооперативной природе взаимодействия между атомами и полем и на сильной нелинейности этого взаимодействия [38]. Например, окружающие частицы создают локальное поле, действующее на отдельный атом, отличное от макроскопического среднего. Это отличие определяется поправкой, которая обеспечивает перенормировку резонансной частоты [42], что и является причиной бистабильности. Бистабильность в оптическом отклике системы имеет практический интерес, так как наличие бистабильности создает потенциальную возможность для построения систем оптической логики и замещения электронов фотонами в системах

данных. Возможность применения этого эффекта в оптических переключателях стимулировало появление большого числа исследований. Помимо интереса к оптической бистабильности с точки зрения практических применений как оптического аналога транзистора, оптического счетчика или элемента оптической памяти, демонстрация этого явления вызвала значительный интерес с фундаментальной точки зрения как довольно явный пример спонтанного упорядочения в открытой, стационарной системе, взаимодействующей со светом. Для обеспечения фиксированного положения в пространстве как парных излучателей, так и плотных ансамблей самым очевидным способом является размещение их внутри прозрачного материала. Однако, в таком случае могут проявляться эффекты взаимодействия частиц-излучателей с материалом-носителем. Это взаимодействие может быть существенным и заметно влиять на характеристики фотолюминесценции. Одним из результатов такого взаимодействия является наличие локального, действующего на излучатели, поля. Влияние локальных полей может быть достаточно сильным даже в случае однородной и изотропной диэлектрической среды [43].

Цель и задачи работы

Целью данной работы является изучение взаимодействия кооперативных систем квантовых излучателей с непрерывным возбуждающим лазерным полем с учетом влияния эффективных локальных полей на отдельные излучатели.

Для достижения данной цели были поставлены следующие **задачи**:

1. Разработка согласованного описания взаимодействия материальной и полевой подсистем на основе цепочки уравнений БГКИ для матриц плотности квантовых излучателей и мод квантованного электромагнитного поля, позволяющего производить анализ как динамических характеристик материальной и полевой подсистем, так и спектральных характеристик фотолюминесценции.
2. Получение управляющего уравнения для матрицы плотности парного квантового излучателя в поле непрерывного лазерного возбуждения с учетом диполь-дипольного взаимодействия при произвольной геометрии возбуждения.
3. Получение уравнений для спектра возбуждения, спектра испускания фотолюминесценции и спектра поглощения пробного сигнала пары двухуровневых квантовых излучателей в поле лазерной волны. Произведение численного расчета полученных уравнений для условий экспериментальных измерений, оригинальных и

известных из актуальной научной литературы.

4. Получение общей системы уравнений для описания ансамбля неподвижных излучателей, внедренных в диэлектрическую среду, в поле непрерывного лазерного возбуждения. Получение управляющего уравнения для матрицы плотности излучателей и описание динамики их возбужденных состояний.

5. Проведение численного моделирования нелинейной динамики возбужденных состояний системы излучателей и полной интенсивности фотолюминесценции.

6. Проведение анализа пороговых оптических явлений, связанных с нелинейной динамикой возбужденных состояний излучателей.

Научная новизна

Поставленные задачи являются новыми и не были решены вплоть до настоящего времени. Впервые выведено основное управляющее уравнение для матрицы плотности пары неидентичных по частоте и моменту перехода квантовых излучателей с возможностью учета произвольной геометрии схемы возбуждения непрерывным лазерным пучком. Получены уравнения для расчета спектров возбуждения и испускания фотолюминесценции. Произведено моделирование спектров возбуждения фотолюминесценции, воспроизводящее результаты экспериментов с кооперативными парами органических молекул. Также впервые исследована динамика интенсивности излучения большого коллективного ансамбля излучателей в диэлектрической среде при реализации режима безрезонаторной оптической бистабильности, на основании которой предложено объяснение наблюдавшегося в эксперименте явления длительных вспышек интенсивности фотолюминесценции микрокристалла алмаза с германиевыми центрами окраски. Таким образом, развитые теоретические подходы были успешно применены для описания оригинальных и известных из актуальной научной литературы экспериментальных результатов по лазерной фотолюминесцентной спектроскопии.

Теоретическая и практическая значимость

Представлен оригинальный подход к выводу управляющего уравнения для описания динамики взаимодействующих систем с внешним лазерным излучением и расчету спектров возбуждения и излучения. Данный подход согласованно учитывает различные процессы коллективного взаимодействия излучателей посредством поля

излучения. С помощью метода цепочки уравнений ББГКИ для редуцированных матриц плотности можно описать эволюцию атомной системы и электромагнитного поля. Коллективные взаимодействия заложены естественным образом в структуре цепочки и позволяют без феноменологических процедур описывать коллективные эффекты в атомной подсистеме и оптические явления, связанные с ними.

В течение последних десятилетий область исследования взаимодействия атома с лазером развивалась стремительными темпами и открыла множество новых и интересных физических явлений. С ростом возможностей управления одиночными квантовыми системами наблюдается прогресс в квантовой оптике. Это достижение не только дает новое понимание фундаментальных процессов, но и составляет необходимое требование для областей квантовых вычислений и квантовой теории информации. Эта область квантовой физики направлена на ускорение классических вычислений и безопасную связь с помощью квантовой криптографии. Важным ресурсом для многих схем квантовых вычислений и квантовой информации является запутанность, которая появляется при диполь-дипольном взаимодействии. Построение запутанных состояний стало отдельной темой в современных исследованиях квантовых вычислений и квантовой информатики [44–46], а субизлучательные состояния исследуются для различных конфигураций излучателей и являются кандидатами в элементы оптических устройств и устройств квантовой памяти [18,47–50]. Показанная в данной работе возможность оптических пороговых явлений, обусловленных коллективными эффектами, может быть актуальна с точки зрения разработок систем оптических переключателей и оптической логики.

Положения, выносимые на защиту

На защиту выносятся следующие положения:

1. Система уравнений ББГКИ, включающая уравнения для одночастичных матриц плотности и корреляционных матриц материальных частиц и фотонных мод, полностью описывает процесс фотолюминесценции, включая кооперативные оптические эффекты, и обеспечивает расчет кинетики состояний системы излучателей, спектров излучения и возбуждения фотолюминесценции, а также спектра поглощения слабого пробного сигнала.

2. Модель двухуровневого излучателя в применении к описанию двух неодинаковых по моментам и частотам переходов квантовых частиц описывает

наблюдаемые в экспериментах спектральные зависимости фотолюминесценции двух диполь-дипольно спутанных органических примесных молекул.

3. Модель равномерно распределенных в пространстве квантовых излучателей внутри слабопоглощающей диэлектрической среды описывает нелинейную динамику их возбужденных состояний, заключающуюся в квазипериодическом изменении интенсивности фотолюминесценции.

Степень достоверности

Достоверность научных результатов обеспечивается использованием строгих математических методов квантовой механики и квантовой оптики, согласием частных случаев с другими теоретическими работами, а также экспериментальными результатами, имеющимися на данный момент в литературных источниках.

Личный вклад

Все изложенные в диссертации результаты получены лично автором, либо при его непосредственном участии.

Апробация результатов

Результаты работы докладывались на международных научных конференциях:

1. 27th annual International Laser Physics Workshop LPHYS18 (July 16-20, 2018, Nottingham, UK) N.A. Lozing, M.G. Gladush, I.Yu. Eremchev, A.V. Naumov, Luminescent Microscopy of Single Pairs of Quantum Dots with a Nanometer Spatial Resolution; N.A. Lozing, M.G. Gladush, I.Yu. Eremchev, Slowly Switching Fluorescence Intensity from an Ensemble of Quantum Emitters in a Dielectric Host.

2. 13th International Scientific Conference “Hole Burning, Single Molecule, and Related Spectroscopies: Science and Applications” HBSM-2018 (August 6-12, 2018, Suzdal - Moscow, Russia) N.A. Lozing, M.G. Gladush, I.Yu. Eremchev, E.A. Ekimov, A.V. Naumov, Spontaneous transitions to enhanced fluorescence for GeV centers in a single microcrystalline diamond.

3. XXII Международная Молодежная Научная Школа по когерентной оптике и оптической спектроскопии КООС2018 (9-11 октября 2018, Казань) Н.А. Лозинг, М.Г. Гладуш, И.Ю. Еремчев, Спектры испускания и возбуждения люминесценции пары двухуровневых излучателей.

4. XIII международные чтения по квантовой оптике IWQO2019 (г. Владимир, 9 – 14 сентября 2019 г.) Н.А. Лозинг, Е.А. Смирнова, М.Г. Гладуш, Применение цепочек ББГКИ для описания люминесценции парных квантовых излучателей.

5. XXIII международная молодежная научная школа "Когерентная оптика и оптическая спектроскопия" (29-31 октября 2019 год, Казань) Н.А. Лозинг, М.Г. Гладуш, Би- и мультстабильность фотолюминесценции ансамбля квантовых излучателей.

6. Single-Molecule Sensors and NanoSystems International Conference – S3IC 2020 (November 9-11, 2020, Barcelona, Spain) N. Lozing, M. Gladush, I. Eremchev, E. Ekimov, A. Naumov, Superflares of Photoluminescence from a Microdiamond with GeV Color Centers: a New Possibility for Quantum Sensing?

7. XII международный симпозиум по фотонному эхо и когерентной спектроскопии (ФЭКС-2021) памяти профессора Виталия Владимировича Самарцева (г. Казань, 25-30 октября 2021 г.) Н.А. Лозинг, Е.А. Смирнова, М.Г. Гладуш, Применение цепочек ББГКИ для исследования диполь-дипольного взаимодействия парных квантовых излучателей: методы расчета спектров возбуждения и испускания.

Структура и объем диссертации

Диссертация состоит из введения, трех глав, заключения и пяти приложений. Полный объем диссертации составляет 103 страницы, включая 28 рисунков. Список литературы содержит 97 наименований.

Основное содержание работы

Во **Введении** описаны суть исследования, его цель и решаемые задачи. Приведен обзор научной литературы. Сформулированы положения, выносимые на защиту. Приведен список работ автора и информация об апробации результатов.

В **Главе 1** описан формализм, применяемый к исследованию фотолюминесценции примесных центров в твердых средах. Описываемый метод основан на применении квантовых цепочек ББГКИ, модифицированных и адаптированных к решению оптических и спектроскопических задач. В этой главе описан общий подход к построению цепочек уравнений и основные приближения, необходимые для получения укороченных замкнутых цепочек уравнений и выводу из них уравнений для матрицы плотности излучателей и измеряемых спектральных зависимостей.

В п. 1.1 приводится структура цепочки уравнений ББГКИ. Уравнение фон Неймана для общей матрицы плотности мод квантованного поля и произвольного числа материальных частиц двух сортов заменяется системой зацепляющихся уравнений для одночастичных матриц плотности и корреляционных операторов. Предполагается, что межатомное взаимодействие осуществляется только посредством поля излучения и выражено квантовыми операторами Гамильтона. Наличие или отсутствие внешнего возмущения определяется начальными условиями. Коллективные эффекты учитываются через влияние самосогласованного поля и межчастичных корреляций. Формулируются приближения разрыва ББГКИ, необходимые для описания динамики параметров излучателя и спектров рассеянного излучения.

В п. 1.2 описана модификация замкнутой системы уравнений (укороченной цепочки ББГКИ) посредством суммирования полевых мод, т.е., переход от уравнений для мод квантованного поля к уравнениям для полевых величин – вектора напряженности электрического поля и величины, описывающей вклад в эволюцию излучателя атомно-фотонного корреляционного оператора.

Глава 2 посвящена использованию основного кинетического уравнения для матрицы плотности пары квантовых излучателей с диполь-дипольным взаимодействием в расчетах спектров кооперативной фотолюминесценции. В этой главе приводятся результаты численного решения уравнений для матрицы плотности

излучателей и результаты численного моделирования спектров возбуждения фотолюминесценции, спектров испускания фотолюминесценции и спектров поглощения пробного сигнала. Показывается согласие результатов численных расчетов с данными экспериментов по лазерной фотолюминесцентной спектроскопии одиночных молекул в твердых матрицах, как оригинальных, так и известных из литературы.

В п. 2.1 формулируется модель рассматриваемой системы и приводится структура оператора Гамильтона. Описываются свойства операторов физических величин и их представления. Рассматриваемая модель представляет собой двухкомпонентную квантово-механическую систему, состоящую из двух частиц излучателей и мод квантованного поля. Излучатели рассматриваются в рамках модели двухуровневого атома. Частота дипольного перехода каждого излучателя близка к частоте внешнего лазерного поля и различна для каждого излучателя. Взаимодействие между частицами и излучателями осуществляется только посредством электромагнитного поля в дипольном приближении.

В п. 2.2 представлен вывод основного управляющего уравнения (1) для эволюции во времени матрицы плотности парного излучателя:

$$\begin{aligned}
\frac{d}{dt}\rho_{\{a\}} = & -i \sum_i \Delta_i [\hat{\sigma}_i^+ \hat{\sigma}_j^-, \rho_{\{a\}}] + i \sum_i [\Omega_i(\mathbf{r}_i) \hat{\sigma}_i^- + \Omega_i^*(\mathbf{r}_i) \hat{\sigma}_i^+, \rho_{\{a\}}] \\
& + i \sum_{i \neq j} \Omega_{ij} [\hat{\sigma}_i^+ \hat{\sigma}_j^-, \rho_{\{a\}}] - \sum_{i,j} \gamma_{ij} ([\hat{\sigma}_i^+, \hat{\sigma}_j^- \rho_{\{a\}}] + [\rho_{\{a\}} \hat{\sigma}_i^+, \hat{\sigma}_j^-]) \\
& - \frac{1}{\hbar^2} \sum_{i,j} \left([\hat{\sigma}_i^+, [\hat{\sigma}_j^-, \rho_{\{a\}}]] \int_0^t dt' \mathbf{d}_i \vec{\mathbf{W}}(\mathbf{r}_i, \mathbf{r}_j, t, t') \mathbf{d}_j e^{i\omega_j(t-t')} \right. \\
& \left. + [\hat{\sigma}_i^-, [\hat{\sigma}_j^+, \rho_{\{a\}}]] \int_0^t dt' \mathbf{d}_i \vec{\mathbf{W}}(\mathbf{r}_i, \mathbf{r}_j, t, t') \mathbf{d}_j e^{-i\omega_j(t-t')} \right)
\end{aligned} \tag{1}$$

где $\Omega_i(\mathbf{r}) = \Omega_i e^{-i\mathbf{k}_L \cdot \mathbf{r}}$, $\Omega_i = \mathbf{d}_i \cdot \mathbf{E} / 2\hbar$ - частота Раби. Из операторной части в последней сумме этого уравнения следует, что это слагаемое отвечает за различные каналы обмена между населенностями и когерентности, вызванные многократным рассеянием фотонов, которое не учитывается в данной работе.

Основное кинетическое уравнение для матрицы плотности излучателей следует из трех первых типов уравнений цепочки ББГКИ: атомной матрицы плотности $\rho_{\{a\}}$, матриц плотности мод поля ρ_f и корреляционных операторов $g_{\{a\}f}$. Корреляция $g_{\{a\}f}$

описывает радиационное затухание излучателей, при этом для определения затухания самой корреляции необходим частичный учет корреляции следующего порядка $g_{\{a\}ff'}$. Показывается, что самовоздействие излучателя автоматически компенсируется внутри структуры ББГКИ данного и более высоких приближений. Приводится вывод атомных операторов радиационного затухания, частотных сдвигов и взаимодействия с некогерентными фотонами.

В п. 2.3 изучается зависимость полной интенсивности фотолюминесценции от частоты внешнего поля возбуждения (спектры возбуждения фотолюминесценции). Произведено численное решение полученных уравнений (Рис. 1). Показано, что полученные зависимости согласуются с известными экспериментальными результатами (Рис. 2 и Рис. 3).

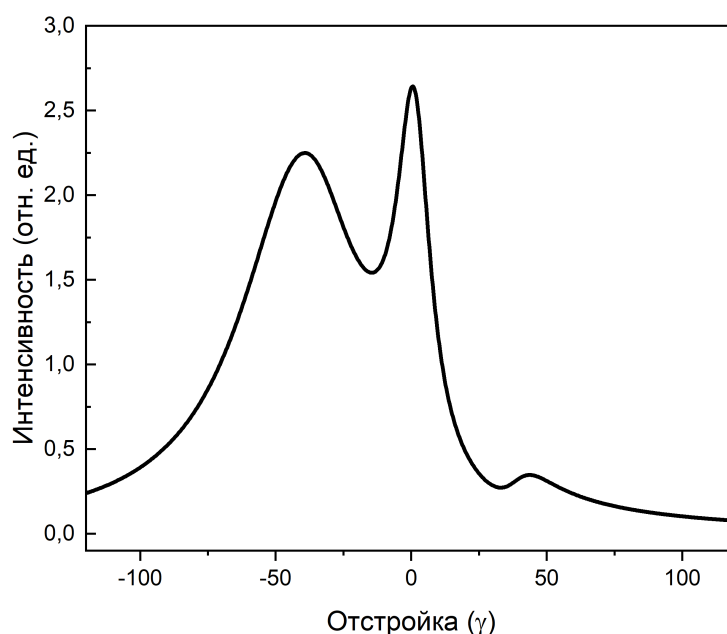


Рис. 1. Типичный профиль спектра возбуждения кооперативной фотолюминесценции пары квантовых излучателей. Центральный максимум соответствует двухфотонному процессу возбуждения (одновременному поглощению двух фотонов и последующему излучению пары коррелированных фотонов), боковые пики соответствуют коллективным возбужденным состояниям (сверхизлучательному слева и субизлучательному справа). Расстояние между пиками определяется величиной диполь-дипольного взаимодействия и разницей частот переходов излучателей.

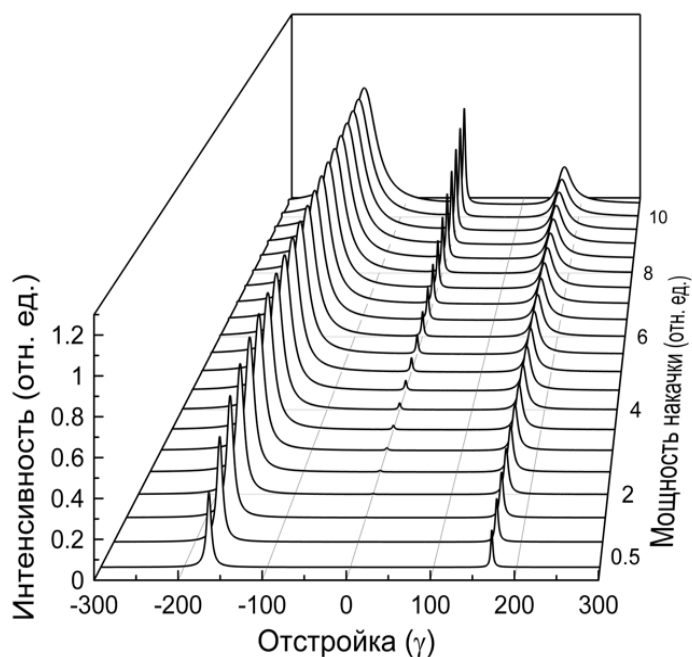


Рис. 2. Спектр возбуждения кооперативной фотолюминесценции пары излучателей для различных мощностей возбуждения. Симуляция зависимости, наблюдаемой в работе [7].

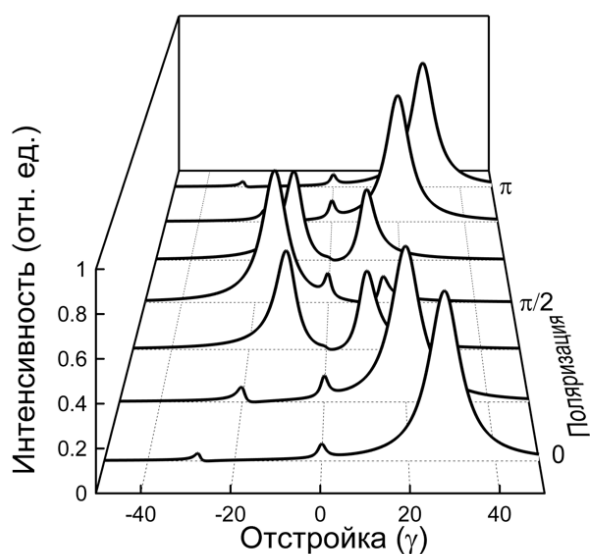


Рис. 3. Миграция спектра возбуждения кооперативной фотолюминесценции при вращении поляризации внешнего поля. Симуляция эффекта, наблюдаемого в работе [8].

В п. 2.4 из уравнений для матрицы плотности моды квантованного поля ρ_f и оператора ее корреляции с излучателем g_{af} выводится выражение для стационарного спектра фотолюминесценции и поглощения пробного сигнала. Элементы матрицы плотности излучателя, определяющие данные зависимости, следуют из нелинейных уравнений, которые решаются численно. Спектры рассеянного излучения анализируются численно.

Глава 3 посвящена изучению свойств фотолюминесценции плотного коллективного ансамбля квантовых излучателей внутри слабо поглощающей диэлектрической среды. В данной главе произведен анализ внутренней оптической бистабильности и динамики переходных процессов при переключениях излучающей системы между ее стационарными состояниями. Также в ней продемонстрировано, что развитые и описанные в первой главе теоретические подходы приводят к результатам, согласующимся с результатами оригинальных экспериментов по лазерной фотолюминесцентной спектроскопии микрокристаллов алмаза с центрами окраски типа Ge-вакансия.

В п. 3.1 формулируется модель рассматриваемой системы и приводится общая структура оператора Гамильтона. Рассматриваемая модель представляет собой трехкомпонентную квантово-механическую систему, состоящую из частиц среды, излучателей и мод квантованного поля. Излучатели и частицы среды рассматриваются в рамках модели двухуровневого атома. Частота дипольного перехода излучателя близка частоте постоянно действующего внешнего лазерного поля. Взаимодействие между частицами и излучателями осуществляется только посредством электромагнитного поля в дипольном приближении. Среда состоит из неподвижных частиц, частота дипольного перехода которых находится вдали от резонанса с частотой внешнего лазерного поля.

В п. 3.2 представлен вывод основного управляющего уравнения (2) для эволюции во времени матрицы плотности излучателя в среде с диэлектрической проницаемостью ϵ :

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt}\rho = & -i\Delta[\sigma^+\sigma^-, \rho] + i[\Omega^*\sigma^+ + \Omega\sigma^-, \rho] + i\Delta_\epsilon[\rho_{21}\sigma^+ + \rho_{12}\sigma^-, \rho] \\ & - \gamma_\epsilon[\rho_{21}\sigma^+ - \rho_{12}\sigma^-, \rho] - \gamma(\sigma^+\sigma^-\rho + \rho\sigma^+\sigma^- - 2\sigma^-\rho\sigma^+). \end{aligned} \quad (2)$$

Здесь частотные коэффициенты содержат комплексные значения l, ϵ и ϵ , где $l(\epsilon)$ – коэффициент пропорциональности между полем, действующим на отдельный атом (локального поля), и средним полем в среде $\mathbf{E}_{loc} = l(\epsilon)\mathbf{E}$, для которых используем разложение на действительную и мнимую части, т.е., $l = l_R + il_I$, $\epsilon = l/\epsilon = \epsilon_R + i\epsilon_I$ и $\sqrt{\epsilon} = n + ik$. В новых обозначениях эффективная отстройка $\Delta = (\omega_a - \omega_0) - \delta$, где радиационный сдвиг частоты:

$$\delta_\epsilon = \frac{1}{\hbar} \mathbf{d} \cdot \text{Re}\{l(\omega_a \mathbf{G}_\epsilon(0, \omega_a))\} \cdot \mathbf{d} = \left(l_R - \frac{\kappa l_R + n l_I}{2\delta_0} \gamma_0 \right) \delta_0,$$

где $\delta_0 = 1/\hbar(\mathbf{d} \cdot \text{Re}\{\mathbf{G}_0(0, \omega_a)\} \cdot \mathbf{d})$ – значение для вакуума, $\Delta_\epsilon = \epsilon_R(4\pi/3)N_a|\mathbf{d}|^2$ – динамический сдвиг частоты, $\gamma_\epsilon = \epsilon_I(4\pi/3)N_a|\mathbf{d}|^2$ – кооперативный коэффициент затухания и, γ – эффективная скорость релаксации:

$$\gamma_\epsilon = \frac{1}{\hbar} \mathbf{d} \cdot \text{Im}\{l(\omega_a \mathbf{G}_\epsilon(0, \omega_a))\} \cdot \mathbf{d} = \left(n l_R - \frac{\kappa - 2\delta_0}{\gamma_0} l_I \right) \gamma_0,$$

где $\gamma_0 = 1/\hbar(\mathbf{d} \cdot \text{Im}\{\mathbf{G}_0(0, \omega_a)\} \cdot \mathbf{d})$ – естественная ширина линии в вакууме.

В п. 3.3 рассматривается система нелинейных уравнений для элементов атомной матрицы плотности. В стационарном случае выводится уравнение для разности населенностей атомных состояний:

$$\eta^2 W^3 + (\zeta^2 - \eta^2) W^2 + \left(2\beta^2 + (\Delta - \delta_\epsilon)^2 + \frac{\gamma_\epsilon^2}{4} - \zeta^2 \right) W - (\Delta - \delta_\epsilon)^2 - \frac{\gamma_\epsilon^2}{4} = 0, \quad (3)$$

где $\eta^2 = (u_R \xi)^2 + (u_I \xi)^2 = |u(\epsilon)|^2 \xi^2$ – перенормированный фактор кооперативности; $\zeta^2 = (u_I \gamma_\epsilon - 2u_R(\Delta - \delta_\epsilon))\xi$ – перекрестные произведения фактора кооперативности с γ_ϵ и Δ ; $\beta^2 = (l_R \Omega)^2 + (l_I \Omega)^2 = |l(\epsilon)|^2 \Omega^2$ – эффективное значение частоты Раби Ω , перенормированное на $l(\epsilon)$.

Обсуждается его общая структура и решения, найденные численно. Приводятся характерные гистерезисные зависимости населенности возбужденного состояния излучателя от напряженности внешнего поля (Рис. 4).

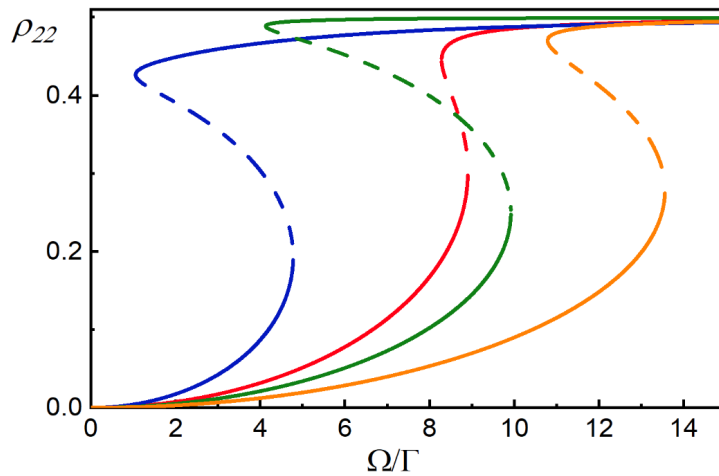


Рис. 4. Зависимость населенности возбужденного состояния от значений частоты Раби, выраженной в единицах естественной ширины линии и рассчитанной для различных значений параметров кооперативности.

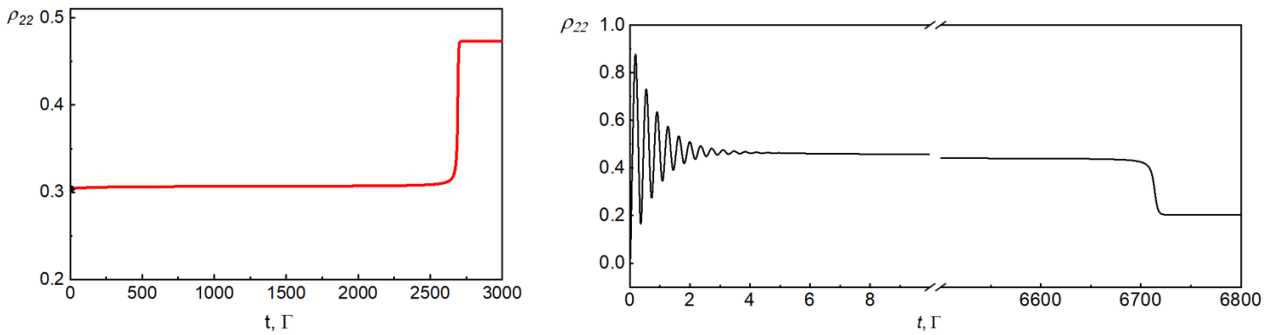


Рис. 5. Характерная эволюция во времени населенности возбужденного состояния излучателя при изменении внешнего поля $\Omega^* = \Omega_{cr} + \delta\Omega$ (слева), при котором существует одно устойчивое решение. Эволюция во времени населенности возбужденного состояния излучателя при включении внешнего поля (справа), при котором существует одно устойчивое решение на нижней ветви.

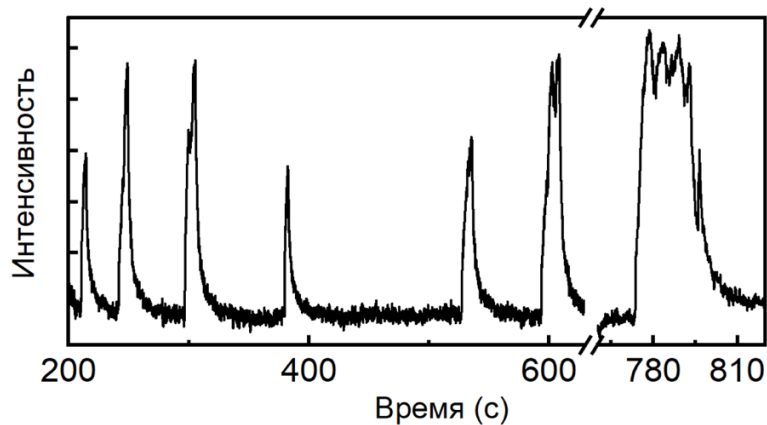


Рис. 6. Характерная временная динамика интенсивности фотолюминесценции, наблюдаемой в работе [51]

В п. 3.4 приводятся результаты численных расчетов переходных процессов при переключении между уровнями интенсивности фотолюминесценции в области критических значений параметров, определяющих границы существования стационарных решений для населенностей. На Рис. 5 изображена эволюция во времени населенности верхнего уровня системы, определяющего интенсивность излучения. В обоих случаях видно, что переход происходит не мгновенно, а в течение долгого времени. Данные расчеты приведены для интерпретации наблюдавшегося явления спонтанных возрастных интенсивности фотолюминесценции микрокристалла алмаза с германиевыми центрами окраски (Рис. 6).

В **заключении** диссертационной работы приведены основные результаты исследования:

1. Получена замкнутая система уравнений для описания взаимодействия ансамбля квантовых излучателей и мод квантованного электромагнитного поля на основе цепочки уравнений ББГКИ для редуцированных одночастичных матриц плотности и многочастичных корреляционных матриц.

2. Получено основное управляющее уравнение для матрицы плотности парного двухуровневого излучателя в поле непрерывного лазерного возбуждения, содержащих операторы, описывающие коллективные процессы взаимодействия и радиационной релаксации.

3. Получены уравнения для вычисления спектра возбуждения фотолюминесценции, спектра испускания фотолюминесценции и спектра поглощения пробного сигнала для пары неидентичных двухуровневых квантовых излучателей в поле лазерной волны с учетом произвольной геометрии возбуждения и детектирования.

4. Произведен численный расчет стационарного спектра возбуждения фотолюминесценции, спектра испускания фотолюминесценции и спектра поглощения пробного сигнала. Произведена серия численных расчетов наблюдавшихся в эксперименте характерных зависимостей спектров возбуждения фотолюминесценции пары органических молекул в твердотельной матрице. Показано соответствие численных расчетов и наблюдавшихся эффектов.

5. Показано как при изменении угла между направлением поляризации возбуждающего света с осью кооперативной пары происходит спектральная миграция положений максимумов в спектре возбуждения фотолюминесценции кооперативной пары неидентичных квантовых излучателей. Показано согласие рассчитанных зависимостей с экспериментальными данными для кооперативной пары органических молекул в твердотельной матрице.

6. Получена общая система уравнений для описания фотолюминесценции ансамбля неподвижных излучателей, внедренных в слабо поглощающую диэлектрическую среду.

7. Получены аналитические выражения и общий вид поправки для скорости радиационной релаксации излучателя в среде и для действующего на излучатель эффективного локального поля, определяемого свойствами среды-носителя.

8. Произведен расчет динамики населенностей системы квантовых излучателей в

диэлектрической среде и полной интенсивности фотолюминесценции. Проведен анализ пороговых оптических явлений, связанных с нелинейной динамикой возбужденных состояний излучателей.

9. Исследован процесс оптического переключения системы из состояния с тусклым уровнем интенсивности фотолюминесценции в состояния с ярким уровнем интенсивности. Произведена симуляция наблюдаемых в эксперименте по лазерной фотолюминесцентной спектроскопии микрокристаллов алмаза с центрами окраски Ge-вакансия.

10. Предложена интерпретация наблюдавшегося явления спонтанных возрастных изменений интенсивности фотолюминесценции микрокристалла алмаза с германиевыми центрами окраски.

Список публикаций автора по теме диссертации

Основные результаты по теме диссертации изложены в 4 статьях в журналах, рекомендованных ВАК:

1. Е.А. Смирнова, Н.А. Лозинг, М.Г. Гладуш, А.В. Наумов, Спектры поглощения пробного сигнала и резонансной флуоресценции для излучателей при их взаимодействии с локальным окружением в прозрачных средах, Оптика и спектроскопия, Т. 130, № 1, С. 151-159 (2022).

2. N.A. Lozing, M.G. Gladush, I.Yu. Eremchev, E.A. Ekimov, A.V. Naumov, Stochastic superflares of photoluminescence from a single microdiamond with germanium-vacancy color centers: A general phenomenon or a unique observation, Phys. Rev. B, Vol. 102, Iss. 6, Art. № 060301(R) (2020).

3. И.Ю. Еремчев, Н.А. Лозинг, А.А. Баев, А.О. Тарасевич, М.Г. Гладуш, А.А. Роженцов, А.В. Наумов, Люминесцентная микроскопия одиночных пар квантовых точек с нанометровым пространственным разрешением, Письма в ЖЭТФ, Т. 108, № 1, С. 26-34 (2018).

4. И.Ю. Еремчев, Н.А. Лозинг, М.Г. Гладуш, А.А. Баев, А.А. Роженцов, А.В. Наумов, К вопросу об измеряемых флуктуациях интенсивности люминесценции одиночных точечных излучателей: артефакты обработки микроскопических изображений, Известия Российской академии наук. Серия физическая, Т. 82, № 11, С. 1624-1628 (2018).

Список литературы, цитируемой в автореферате

1. Андреев А.В., Емельянов В.И., Ильинский Ю.А. Кооперативные явления в оптике. Сверхизлучение. Бистабильность. Фазовые переходы. М.: Наука, Гл. ред. физ.-мат. лит., 1988. 288 p.
2. Dicke R.H. Coherence in Spontaneous Radiation Processes // *Phys. Rev. American Physical Society*, 1954. Vol. 93, № 1. P. 99–110.
3. Kuś M., Wódkiewicz K. Two-atom resonance fluorescence // *Phys Rev A*. 1981. Vol. 23, № 2. P. 853–857.
4. Agarwal G. S., Saxena R., Narducci L. M., Feng D. H., Gilmore R. Analytical solution for the spectrum of resonance fluorescence of a cooperative system of two atoms and the existence of additional sidebands // *Phys Rev A*. 1980. Vol. 21, № 1. P. 257–259.
5. Richter Th. Cooperative Resonance Fluorescence from Two Atoms Experiencing Different Driving Fields // *Optica Acta: International Journal of Optics*. 1983. Vol. 30, № 12. P. 1769–1780.
6. Rudolph T.G., Ficek Z., Dalton B.J. Two-atom resonance fluorescence in running- and standing-wave laser fields // *Phys Rev A. American Physical Society*, 1995. Vol. 52, № 1. P. 636–656.
7. Hettich C., Schmitt C., Zitzmann J., Kühn S., Gerhardt I., Sandoghdar V. Nanometer resolution and coherent optical dipole coupling of two individual molecules. // *Science. American Association for the Advancement of Science*, 2002. Vol. 298, № 5592. P. 385–389.
8. Trebbia J.-B., Deplano Q., Tamarat P., Lounis B. Tailoring the superradiant and subradiant nature of two coherently coupled quantum emitters // *Nat Commun*. 2022. Vol. 13, № 1. P. 2962.
9. Ficek Z., Tanas R., Kielich S. Analytical solutions for light absorption spectra of two driven atoms // *Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics*. 1984. Vol. 17, № 8. P. 1491–1501.
10. Agarwal G.S. et al. Analytical solution for the spectrum of resonance fluorescence of a cooperative system of two atoms and the existence of additional sidebands // *Phys Rev A*. 1980. Vol. 21, № 1. P. 257–259.
11. Андреев А. В. Оптическое сверхизлучение: новые идеи и новые эксперименты // *Успехи физических наук*. 1990. Vol. 160, № 12. P. 1.

12. Andreev A. V, Polevoi P. V. Superradiance of two-component quairesonant media // *Quantum Elec (Woodbury)*. 1996. Vol. 26, № 7. P. 631–635.
13. Andreev A.V., Sheetlin S.L. Superradiance and Raman scattering in three-level molecular system // *Infrared Phys Technol*. 1996. Vol. 37, № 7. P. 733–739.
14. Fofanov Y.A. et al. Subradiance in dilute atomic ensembles: Role of pairs and multiple scattering // *Phys Rev A*. 2021. Vol. 104, № 2. P. 023705.
15. Weiss P. et al. Superradiance as single scattering embedded in an effective medium // *Phys Rev A*. 2021. Vol. 103, № 2. P. 023702.
16. Sokolov I.M. Subradiance of Cold and Dilute Atomic Ensembles Excited by Resonant Pulsed Radiation // *Journal of Experimental and Theoretical Physics*. 2021. Vol. 132, № 1. P. 56–62.
17. Kuraptsev A.S., Sokolov I.M. Spontaneous decay of an atom excited in a dense and disordered atomic ensemble: Quantum microscopic approach // *Phys Rev A*. 2014. Vol. 90, № 1. P. 012511.
18. Walther A. et al. Experimental superradiance and slow-light effects for quantum memories // *Phys Rev A*. 2009. Vol. 80, № 1. P. 012317.
19. Basché Th. et al. Photon antibunching in the fluorescence of a single dye molecule trapped in a solid // *Phys Rev Lett*. 1992. Vol. 69, № 10. P. 1516–1519.
20. Piliarik M., Sandoghdar V. Direct optical sensing of single unlabelled proteins and super-resolution imaging of their binding sites // *Nat Commun*. 2014. Vol. 5, № 1. P. 4495.
21. Nirmal M. et al. Fluorescence intermittency in single cadmium selenide nanocrystals // *Nature*. 1996. Vol. 383, № 6603. P. 802–804.
22. Eichhammer E. et al. Spectroscopic detection of single Pr^{3+} ions on the $^3\text{H}_4 - ^1\text{D}_2$ transition // *New J Phys*. 2015. Vol. 17, № 8. P. 083018.
23. Naumov A. V. Low-temperature spectroscopy of organic molecules in solid matrices: from the Shpol'skii effect to laser luminescent spectromicroscopy for all effectively emitting single molecules // *Physics-Uspekhi*. 2013. Vol. 56, № 6. P. 605–622.
24. Eremchev I. Yu., Lozing N. A., Baev A. A., Tarasevich A.O., Gladush M. G., Rozhentsov A. A., Naumov A.V. Luminescence Microscopy of Single Quantum Dot Pairs with Nanometer Spatial Resolution // *JETP Lett*. 2018. Vol. 108, № 1. P. 30–37.
25. И.Ю. Еремчев, Н.А. Лозинг, М.Г. Гладуш, А.А. Баев, А.А. Роженцов, А.В. Наумов, К вопросу об измеряемых флуктуациях интенсивности люминесценции

одинокных точечных излучателей: артефакты обработки микроскопических изображений, Известия Российской академии наук. Серия физическая, Т. 82, № 11, С. 1624-1628 (2018).

26. И.Ю. Еремчев, Н.А. Лозинг, А.А. Баев, А.О. Тарасевич, М.Г. Гладуш, А.А. Роженцов, А.В. Наумов, Люминесцентная микроскопия одиночных пар квантовых точек с нанометровым пространственным разрешением, Письма в ЖЭТФ, Т. 108, № 1, С. 26-34 (2018).

27. Sauter Th. et al. Observation of Quantum Jumps // Phys Rev Lett. 1986. Vol. 57, № 14. P. 1696–1698.

28. Brewer R.G., DeVoe R.G., Kallenbach R. Planar ion microtraps // Phys Rev A. 1992. Vol. 46, № 11. P. R6781–R6784.

29. van Loo A.F. et al. Photon-Mediated Interactions Between Distant Artificial Atoms // Science (1979). 2013. Vol. 342, № 6165. P. 1494–1496.

30. Ropp C. et al. Manipulating Quantum Dots to Nanometer Precision by Control of Flow// Nano Lett. 2010. Vol. 10, № 7. P. 2525–2530.

31. Ficek Z., Tanaś R. Entangled states and collective nonclassical effects in two-atom systems // Phys Rep. 2002. Vol. 372, № 5. P. 369–443.

32. Milonni P.W., Knight P.L. Retarded interaction of two nonidentical atoms // Phys Rev A. 1975. Vol. 11, № 3. P. 1090–1092.

33. Ficek Z., Tanaś R., Kielich S. Quantum beats and superradiant effects in the spontaneous emission from two nonidentical atoms // Physica A: Statistical Mechanics and its Applications. 1987. Vol. 146, № 3. P. 452–482.

34. Leslie Allen, J. H. Eberly. Optical resonance and two-level atoms // Dover books on physics and chemistry. 1987.

35. Lehmberg R.H. Radiation from an N-Atom System. I. General Formalism // Phys Rev A. American Physical Society, 1970. Vol. 2, № 3. P. 883–888.

36. Agarwal G.S. Quantum statistical theories of spontaneous emission and their relation to other approaches. Springer, Berlin, Heidelberg, 1974. P. 1–128.

37. Richter T. Power Broadening and Two-photon Correlations in Two-atom Resonance Fluorescence // Optica Acta: International Journal of Optics. Taylor & Francis, 1982. Vol. 29, № 3. P. 265–273.

38. Bowden C.M., Sung C.C. First- and second-order phase transitions in the Dicke model: Relation to optical bistability // *Phys Rev A*. 1979. Vol. 19, № 6. P. 2392–2401.
39. Hopf F.A., Bowden C.M., Louisell W.H. Mirrorless optical bistability with the use of the local-field correction // *Phys Rev A*. 1984. Vol. 29, № 5. P. 2591–2596.
40. Ben-Aryeh Y., Bowden C. Intrinsic optical bistability in collections of spatially distributed two-level atoms // *Phys Rev A*. 1986. Vol. 34, № 5. P. 3917–3926.
41. Friedberg R., Hartmann S.R., Manassah J.T. Effect of local-field correction on a strongly pumped resonance // *Phys. Rev. A*. American Physical Society, 1989. Vol. 40, № 5. P. 2446–2451.
42. Gladush M.G., Kuznetsov D. V., Roerich V.K. Emission spectra and intrinsic optical bistability in a two-level medium // *European Physical Journal D*. 2011. Vol. 64, № 2–3. P. 511–520.
43. Naumov A. V. et al. Micro-Refractometry and Local-Field Mapping with Single Molecules // *Nano Lett*. 2018. Vol. 18, № 10. P. 6129–6134.
44. Pastori L., Heyl M., Budich J.C. Disentangling sources of quantum entanglement in quench dynamics // *Phys Rev Res*. 2019. Vol. 1, № 1. P. 012007.
45. Pezzè L. et al. Quantum metrology with nonclassical states of atomic ensembles // *Rev Mod Phys*. 2018. Vol. 90, № 3. P. 035005.
46. Streltsov A., Adesso G., Plenio M.B. *Colloquium* : Quantum coherence as a resource // *Rev Mod Phys*. 2017. Vol. 89, № 4. P. 041003.
47. Kornovan D.F. et al. Extremely subradiant states in a periodic one-dimensional atomic array // *Phys Rev A*. 2019. Vol. 100, № 6. P. 063832.
48. Berezhnoi A.D., Zakirov A.I., Kalachev A.A. Quantum memory based on SiV-centers in nanodiamonds // *Laser Phys Lett*. 2022. Vol. 19, № 12. P. 125206.
49. Kalachev A. Quantum storage on subradiant states in an extended atomic ensemble // *Phys Rev A*. 2007. Vol. 76, № 4. P. 043812.
50. Kalachev A., Kröll S. Coherent control of collective spontaneous emission in an extended atomic ensemble and quantum storage // *Phys Rev A*. 2006. Vol. 74, № 2. P. 023814.
51. Lozing N.A. et al. Stochastic superflares of photoluminescence from a single microdiamond with germanium-vacancy color centers: A general phenomenon or a unique observation // *Phys Rev B*. 2020. Vol. 102, № 6. P. 060301.