

ФЕДЕРАЛЬНОЕ ГОСУДАРСТВЕННОЕ БЮДЖЕТНОЕ УЧРЕЖДЕНИЕ
НАУКИ ФИЗИЧЕСКИЙ ИНСТИТУТ ИМ. П. Н. ЛЕБЕДЕВА
РОССИЙСКОЙ АКАДЕМИИ НАУК (ФИАН)

На правах рукописи

Грициенко Александр Владимирович

**Фотодинамика люминесценции гибридных
наноструктур с твердотельными источниками
света**

Специальность 1.3.6 — Оптика

Автореферат

диссертации на соискание учёной степени
кандидата физико-математических наук

Москва — 2024

Работа выполнена в Федеральном государственном бюджетном учреждении науки Физическом институте имени П.Н. Лебедева Российской академии наук (ФИАН).

Научный руководитель:

Витухновский Алексей Григорьевич, доктор физико-математических наук, профессор.

Официальные оппоненты:

Овчинников Олег Владимирович, доктор физико-математических наук, профессор, декан физического факультета, заведующий кафедрой оптики и спектроскопии Федерального государственного бюджетного образовательного учреждения высшего образования «Воронежский государственный университет».

Смирнов Александр Михайлович, доктор физико-математических наук, доцент кафедры физики полупроводников и криоэлектроники Физического факультета Федерального государственного бюджетного образовательного учреждения высшего образования «Московский государственный университет имени М.В. Ломоносова».

Ведущая организация:

Автономная некоммерческая образовательная организация высшего образования «Сколковский институт науки и технологий» (Сколтех) (г. Москва).

Защита состоится «16» сентября 2024 г. в 10:00 на заседании диссертационного совета 24.1.262.01 на базе ФИАН по адресу: 119991, Москва, Ленинский проспект, 53.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке Физического института имени П.Н. Лебедева РАН и на сайте института www.lebedev.ru.

Автореферат разослан «____» _____ 2024 г.

Ученый секретарь
диссертационного совета 24.1.262.01,
доктор физико-математических наук

А. С. Золотько

Общая характеристика работы

Диссертация посвящена изучению люминесцентных свойств современных однофотонных источников света на основе полупроводниковых нанокристаллов, излучающих центров в наноалмазах и гексагональном нитриде бора, а также гибридных наноантенн на их основе, таких как наночастицы, расположенные на плоской металлической поверхности и внутри металлических наноуглублений.

Актуальность темы исследования.

Основа квантовой криптографии, коммуникаций и линейно-оптических вычислений строится на генерации, передаче и регистрации отдельных фотонов [1, 2]. Фотоны распространяют информацию со скоростью света и слабо взаимодействуют с веществом, поэтому они являются основными кандидатами для безопасной передачи данных [3–6]. В 1984 году Чарльз Беннет и Жиль Brassar предложили квантовый протокол BB84 для защищенной передачи данных [7]. Ключевым элементом данного протокола является передача информации с помощью состояния поляризации отдельных фотонов, поэтому перехват сигнала третьей стороной может быть легко обнаружен принимающей стороной. Для реализации данного протокола необходимы источники одиночных фотонов, которые могут испускать фотоны по требованию [8–11]. Эти источники могут быть созданы на основе эффектов спонтанного параметрического рассеяния (СПР) или четырехволнового смешивания (ЧВС) в оптически нелинейных средах [12, 13]. Однако эти подходы имеют недостатки, связанные с вероятностными процессами генерации фотонов и ненулевой вероятностью многофотонных событий [14]. Альтернативный подход связан с использованием спонтанного излучения отдельных атомов или атомоподобных твердотельных систем, ведущих себя как двухуровневые системы, в которых перечисленные недостатки отсутствуют [15].

На сегодня одним из наиболее перспективных типов источников одиночных фотонов (ИОФ) являются твердотельные излучатели, такие как полупроводниковые нанокристаллы (квантовые точки, КТ) [15, 16], люминесцентные центры в алмазах [17, 18] и слоистых наноматериалах [19, 20]. С одной стороны, такие системы могут сочетать в себе оптические свойства атомов и масштабируемость твердотельных систем. С другой стороны, у них есть несколько проблем, например, они могут иметь однородное уширение спек-

тральной линии, что приводит к испусканию фотонов с разными свойствами от одного и того же источника, а также существует низкая вероятность испускания двух совершенно одинаковых фотонов от разных источников. Кроме того, подобные твердотельные системы хорошо работают при криогенных температурах, однако при комнатных температурах их свойства, как правило, далеки от необходимых для практического использования. Так, их рабочие скорости работы определяются временем релаксации спонтанного излучения, которая обычно составляет более одной наносекунды, а спектральная ширина излучения – не менее 1 ГГц.

Проблему низкой скорости испускания фотонов излучателями можно решить за счет усиления взаимодействия света и вещества. Этого можно добиться с помощью оптических резонаторов [21]. Усиление взаимодействия света с веществом в этом случае пропорционально отношению добротности Q резонатора к модовому объему V резонатора, в котором заключен свет. В традиционных диэлектрических оптических резонаторах добротность может быть порядка 10^4 , но степень, до которой объем V может быть уменьшен, ограничена дифракцией [22,23]. Более того, дополнительные шаги по увеличению добротности Q в конечном итоге препятствуют увеличению быстродействия излучающих систем [24].

Ситуация с металлическими резонаторами отличается от диэлектрических. Такие резонаторы обладают малой добротностью Q , но благодаря сильно локализованным электромагнитным модам (плазмонам), возникающим в металле, вблизи них может достигаться значительное усиление взаимодействия между светом и веществом [25]. Таким образом, можно добиться модовых объёмов V , которые на много порядков меньше, чем у диэлектрических резонаторов, за счёт локализации поля в наноразмерном масштабе. Высокие потери излучения в этих низкодобротных металлических резонаторах обеспечивают широкополосную работу на гораздо более высоких частотах испускания фотонов [26]. С помощью таких систем также можно реализовать источник неразличимых фотонов, работающий при комнатной температуре [27,28]. Несмотря на относительно низкую добротность, возможность сильной локализации поля внутри плазмонных резонаторов позволяет реализовать режим сильной связи между резонатором и источниками фотонов [22, 29], что может быть использовано для создания оптических переключателей. Успехи в

данной области являются одними из важнейших шагов к реализации сверхбыстрых логических операций [30–32].

Джоулевы потери энергии излучения в металлическом резонаторе по-прежнему являются одним из факторов, ограничивающих разработку элементов с источниками одиночных фотонов. Это ограничение может быть преодолено за счет изменения геометрии металлических резонаторов от планарной к такой, в которой передача энергии из ближней в дальнюю зону происходит быстрее, чем характерное время релаксации плазмонных колебаний. К такой геометрии можно отнести резонаторы на основе ультрамалых плазмонных полостей, совмещенных с наноантенной. Это позволяет одновременно локализовать световое поле и передавать энергию плазмонов в дальнюю зону [33, 34].

Один из примеров такой геометрии – это наночастицы, которые размещаются на поверхности металла (наночастицы на зеркале, нанопатч антенна, НПА). В таких системах наночастица действует как эффективная антенна для гораздо меньшего резонатора, который образуется за счет зазора между наночастицей и металлической плёнкой [28, 35, 36]. Последние успехи в использовании таких наноантенн позволили создать однофотонные источники на основе излучающих полупроводниковых нанокристаллов [28] и NV-центров в алмазе [37], работающих при комнатной температуре.

Несмотря на полученные за последние годы достижения в исследовании различных однофотонных излучателей и нанорезонансных систем, все еще остается нерешенным целый класс пересекающихся задач. Среди этих задач можно выделить следующие:

- установление физических механизмов излучения источников одиночных фотонов, в частности, в новых материалах [38, 39];
- обеспечение стабильной работы ИОФ при комнатной температуре [15, 40];
- разработка детерминированной, воспроизводимой и масштабируемой технологии изготовления ИОФ [41, 42];
- обеспечение интеграции ИОФ с резонаторами и наноантеннами для получения необходимых излучающих свойств (скорости излучения, однофотонности, спектральной ширины и неразличимости фотонов) [43, 44];

- разработка подходов по интеграции с волноводами [45] для передачи фотонов к другим фотонным элементам.

Только одновременное решение обозначенных задач может позволить применять ИОФ в оптических приложениях, например, для квантовой связи [46,47] или линейно-оптических симуляторов [48,49]. В связи с этим настоящая работа посвящена поиску и исследованию твердотельных ИОФ, стабильно работающих при комнатной температуре, а также подходов в области интеграции наноантенн с излучателями для повышения их скорости и интенсивности излучения.

Целью работы является исследование оптических свойств источников одиночных фотонов и гибридных наноантенн на основе наночастиц на металле и в нанougлублениях при комнатной температуре.

Для достижения поставленной цели были решены следующие научные **задачи**:

1. Исследование оптическими методами люминесцентных свойств новых источников одиночных фотонов на основе органических молекул, коллоидных нанокристаллов, люминесцентных центров в нанодиамазах и гексагональном нитриде бора, работающих при комнатной температуре.
2. Разработка техники поиска источников одиночных фотонов на подложке методами конфокальной микроскопии.
3. Разработка методов изготовления наноантенных устройств с помощью термического и магнетронного нанесения слоев металла, размещения излучателей и наночастиц на подложке и травления металлов сфокусированным ионным пучком.
4. Моделирование распределения электромагнитного поля в резонаторах, содержащих наноантенны.
5. Исследование люминесцентных свойств излучателей в изготовленных резонаторных структурах оптическими методами.

Научная новизна:

1. Впервые проведен анализ техники изготовления структур на основе наночастиц гексагонального нитрида бора, и выбраны режимы, при которых установлено возникновение источников одиночных фотонов. Впервые в таких структурах был обнаружен эффект пере-

ключения излучателей в светлое состояние путем возбуждения излучением дополнительного лазера.

2. Разработана техника изготовления резонаторных структур, состоящих из металлических углублений с помещенными в них одиночными металлическими наночастицами, с воспроизводимыми и контролируемыми характеристиками.
3. Впервые продемонстрирована возможность существенного увеличения фотолюминесценции центров окраски «кремний-вакансия» в наноалмазах внутри цилиндрических углублений в золоте за счет оптически стимулированного изменения зарядового состояния этих центров.
4. Установлено, что помещение одиночной диэлектрической наночастицы внутри металлического наноразмерного углубления цилиндрической или конической формы приводит к повышению добротности образованного резонатора в несколько раз.

Научная и практическая значимость.

Научная значимость работы состоит в том, что у наночастиц гексагонального нитрида бора обнаружены долгоживущие безызлучательные метастабильные состояния, влияющие на режимы излучения источника одиночных фотонов, и которыми можно управлять с помощью дополнительного лазерного возбуждения. Предложена конструкция резонатора на основе металлической наночастицы внутри наноуглубления, в котором диссипация энергии на наночастице оказывается подавленной, что увеличивает вероятность вывода фотонов, испускаемых источником одиночных фотонов в резонаторе, за его пределы. Для одиночных диэлектрических наночастиц, помещенных в металлическое углубление, представлен эффект повышения добротности нанорезонатора, что позволяет увеличивать скорость излучения источников одиночных фотонов, помещенных в такой нанорезонатор.

Практическая значимость работы состоит в том, что полученные результаты могут служить основой для создания источников одиночных фотонов с частотой испускания фотонов более 10^6 с^{-1} и временем излучательной релаксации менее 1 нс. Это позволит реализовать на основе таких источников протокол безопасной передачи информации BB84 или аналогичный. Результаты исследования однофотонных излучателей на основе наночастиц нитрида

бора демонстрируют возможность применения этих частиц в субдифракционной наноскопии и технике получения биоизображений. Результаты исследований упорядоченных металлических наноглублений с помещенными в них металлическими и алмазными наночастицами могут стать основой для изготовления систем с высокой интенсивностью и скоростью излучения, что может быть использовано при производстве различных плазмонных датчиков и маркеров, источников света на основе горячих электронов, полупроводниковых нанокристаллов и излучающих центров в наноалмазах.

Положения, выносимые на защиту:

1. Источники одиночных фотонов на основе частиц гексагонального нитрида бора с размерами менее 15 нм, изготовленных методом «снизу-вверх», переключаются из выключенного в излучающее состояние при возбуждении дополнительным лазерным источником света 375 нм.
2. Обработка нанопластин многослойного hBN ионами аргона и последующий отжиг на воздухе при 750°C обеспечивает создание источников одиночных фотонов, работающих при комнатной температуре. Для таких источников достигается интенсивность зарегистрированного излучения более 10^6 отсчетов в секунду с временем жизни возбужденного состояния менее 1 нс, а вероятность одновременного испускания двух и более фотонов составляет величину порядка 15%.
3. Введение антенны в виде серебряных нанокубиков с размерами 85 нм в алюминиевые цилиндрические углубления диаметром 700 нм и глубиной 300 нм приводит к сокращению среднего времени жизни возбужденного состояния нанокристаллов CdSe/CdS диаметром 8 нм в 2.56 ± 0.15 раза и увеличению интенсивности их люминесценции в 2.6 ± 0.8 раза по сравнению с нанокристаллами в углублениях без нанокубиков.
4. Изменение структуры резонатора с планарной золотой пленки на цилиндрическое углубление диаметром 500 нм и глубиной 220 нм приводит к более чем 8-кратному увеличению интенсивности излучения бесфонной линии помещенных в резонатор наноалмазов с SiV-центрами.

5. Помещение сферической наночастицы кремния диаметром 180 нм с оксидной оболочкой толщиной 50 нм в углубление в золоте диаметром 620 нм и глубиной 300 нм увеличивает добротность системы в 5 раз, с 20 до 100, в сравнении с наночастицей на плоской поверхности золота.

Степень достоверности результатов.

Достоверность результатов эксперимента определяется применением современного оборудования и подтвержденных методик, которые обеспечивали высокую точность и повторяемость экспериментальных данных. В частности, были использованы следующие экспериментальные техники: атомно-силовая, электронная, оптическая и лазерная микроскопии; техника коррелированного счета одиночных фотонов; интерферометрия Хенбери Брауна и Твисса, микро-спектроскопия. Для изготовления образцов были использованы высококачественные материалы и современное технологическое оборудование. Достоверность результатов обработки экспериментальных данных и компьютерного моделирования определяется использованием известных в литературе аналитических моделей и применением проверенных программных пакетов Origin, Comsol Multiphysics, Python, Matlab.

Апробация работы. Основные результаты диссертационной работы представлены на следующих научных конференциях и семинарах:

- International Conference on Metamaterials and Nanophotonics, METANANO, 15 - 19 July 2019, St. Petersburg, Russia.
- International Conference on Metamaterials and Nanophotonics, METANANO, 14–18 September 2020, Russia (online).
- International Conference on Metamaterials and Nanophotonics, METANANO, 13–17 September 2021, Tbilisi, Georgia (online).
- Raman Optronics Webinar Series (ROWS-2021): A Virtual International Conference. 7 November- 7 December 2021, Kerala, University of Kerala, Trivandrum-685581, India.
- 3-rd International Conference On Photonics Research, INTERPHOTONICS 2021, October 17-23, Oludeniz, Mugla, Turkey.
- XII международный симпозиум по фотонному эхо и когерентной спектроскопии (ФЭКС-2021) памяти профессора Виталия Владимировича САМАРЦЕВА. г. Казань, 25-30 октября 2021 г.

- 61-ая Всероссийская научная конференция МФТИ, Москва, 19-25 ноября 2018 г.
- 62-ая Всероссийская научная конференция МФТИ, Москва, 18-23 ноября 2019 г.
- Современные проблемы физики и технологий VIII Международная молодежная научная школа-конференция МИФИ, 15-20 апреля 2019 г., Москва.
- XI Международная конференция по фотонике и информационной оптике, МИФИ, 2022 г., Москва.
- IX Международная молодежная научная Школа-Конференция «Современные проблемы физики и технологий», 26-28 апреля 2022, Москва.
- Школа-конференция молодых учёных «Прохоровские недели» в ЦЕ-НИ ИОФ РАН, ОСПЯ. – 18-20 октября 2022, Москва.
- Доклады на научных семинарах Отдела оптики низкотемпературной плазмы, Московских семинарах по люминесценции Физического института имени П. Н. Лебедева РАН, 2018 - 2022 г.

Личный вклад. Все результаты, представленные в диссертации, были получены лично автором или при его непосредственном участии в отделе люминесценции имени С. И. Вавилова Физического института имени П. Н. Лебедева РАН. Публикации, основанные на этих результатах, были подготовлены совместно с соавторами, и вклад диссертанта в эти работы был определяющим. Образцы с наночастицами гексагонального нитрида бора были предоставлены А.Т. Матвеевым (МИСиС), с нанопластинами гексагонального нитрида бора – М.В. Пугачевым и А.И. Дулебо (ФИАН), с наноалмазами с центрами кремний-вакансия – А.М. Ромшиным (ИОФ РАН), с металлическими наноуглублениями – П.В. Лега, А.П. Орловым, А.С. Ильиным (ИРЭ РАН). Полупроводниковые нанокристаллы были предоставлены Р.Б. Васильевым (МГУ), рутениевый краситель - И.В. Тайдаковым (ФИАН). Создание алюминиевых пленок проводилось совместно с Н.С. Курочкиным (ФИАН). Измерения на электронном сканирующем микроскопе были проведены П.В. Лега и А.П. Орловым (ИРЭ РАН), измерения с помощью атомно-силового микроскопа проведены автором совместно с Д.А. Щербаковым (МФТИ),

спектры и кривые насыщения фотолюминесценции наноалмазов в наноуглублениях получены совместно с А.М. Ромшиным (ИОФ РАН).

Публикации. Основные результаты диссертации изложены в 11 публикациях, из которых 7 статей опубликованы в рецензируемых журналах [A1–A7], а 4 — в сборниках трудов конференций [A8–A11] в изданиях, индексируемых в международных базах Web of Science и Scopus.

Объем и структура работы. Диссертация состоит из введения, четырех глав и заключения. Полный объем диссертации составляет 150 страниц с 59 рисунками и 4 таблицами. Список литературы содержит 290 наименований.

Основное содержание работы

Во **Введении** обоснована актуальность диссертационной работы, сформулированы ее общая цель и конкретные задачи, аргументирована научная новизна исследований и показаны научная и практическая значимость полученных результатов. Представлены выносимые на защиту основные положения, сведения об апробации работы, публикациях по теме диссертации, личном вкладе автора, структуре и объеме диссертационной работы.

Первая глава представляет собой обзор литературы по современному состоянию исследований в области твердотельных источников одиночных фотонов на основе молекулярных, полупроводниковых и диэлектрических систем. Раздел 1.1 посвящен описанию основных характеристик твердотельных излучателей, приведены их отличительные свойства, а также недостатки для практического применения. Сделан вывод о том, что перспективными материалами для создания источников одиночных фотонов могут являться центры окраски в алмазах и люминесцентные центры в гексагональном нитриде бора, которые могут испускать одиночные фотоны при комнатной температуре; при этом полоса излучения таких источников может лежать в видимой и ближней инфракрасной областях спектра. В разделе 1.2 рассмотрены математические модели, описывающие поведение системы, излучающей одиночные фотоны. Проанализированы двухуровневые и многоуровневые модели излучающей системы и обсуждены различные типы статистики регистрации фотонов: группировка, антигруппировка фотонов, случайная статистика фо-

тонов. Сделан вывод о том, что в качестве критерия однофотонности излучения, который может быть установлен на основе результатов эксперимента, является автокорреляционная функция второго порядка.

В разделе 1.3 рассмотрены способы увеличения эффективности вывода излучения, а также скорости спонтанной эмиссии источников одиночных фотонов, основанные на применении оптических наноантенн, включающих в свой состав металлические или диэлектрические наночастицы. В частности, обсуждены системы, где в качестве наноантенн применяются наночастицы, нанесенные на плоскую металлическую пленку, которые позволяют многократно повышать интенсивность излучения источников одиночных фотонов за счет локализации электрического поля в нанометровом объеме между наночастицей и поверхностью металла. Рассмотрены основные характеристики наноантенн: направленность, оптический резонанс, эффективность излучения, усиление люминесценции излучателя вблизи наноантенны. Также рассмотрены основные типы взаимодействия с сильной и слабой связью между наноантенной и излучателем, эффекты Парселла, Фано и Раби. Сделан вывод, что перспективными наноантеннами являются наночастицы на металле.

Во **второй главе** приведены экспериментальные методики исследования наноразмерных излучателей с применением сканирующей конфокальной микроскопии и методы численного моделирования с помощью метода конечных элементов. В разделе 2.1 описаны методы экспериментального исследования характеристик излучения одиночных источников света с помощью коррелированного счета одиночных фотонов, измерения автокорреляционной функции $g^{(2)}(\tau)$ второго порядка и спектров люминесценции. Дополнительно приведена оптическая схема измерений люминесценции нанообъектов, и представлена схема интерферометра Хэнбери Брауна и Твисса. Описанные методики и схемы были применены для определения времен жизни возбужденных состояний, для оценки степени однофотонности и интенсивности излучения. В разделе 2.2 описан метод численного моделирования распределения электрического поля в наноантеннах методом конечных элементов с использованием программного пакета COMSOL Multiphysics. Приведены основные соотношения для вычисления из результатов моделирования сечений поглощения, рассеяния и экстинкции, а также мощности потока энергии наноантенн, состоящих из отдельных наночастиц.

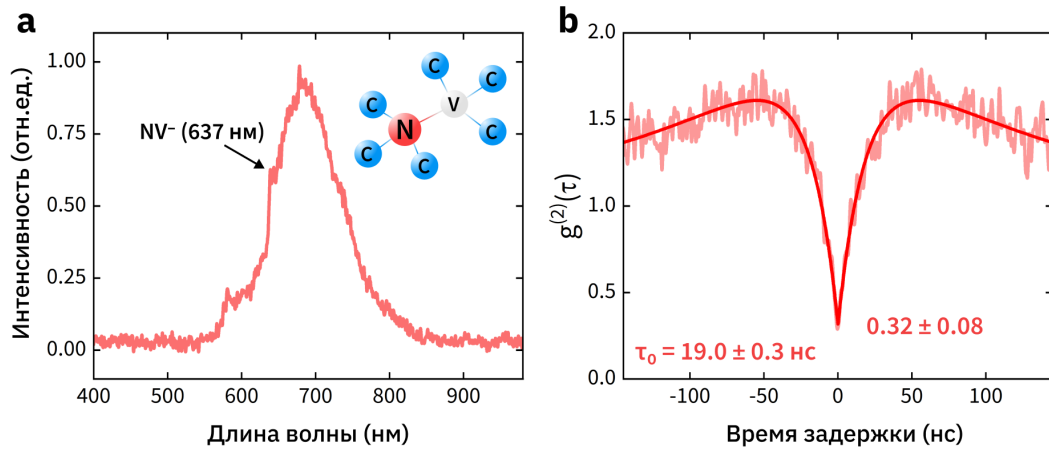


Рис. 1 — Спектр фотолюминесценции (а) и автокорреляционная функция (б) второго порядка для одиночного NV-центра в нанодиамазе.

Третья глава посвящена исследованию люминесцентных свойств коллоидных полупроводниковых нанокристаллов, одиночных NV- и SiV-центров в нанодиамазах, а также люминесцирующих центров в наночастицах и многослойных пластинах гексагонального нитрида бора (hBN).

В разделе 3.1 приведены результаты люминесцентных измерений одиночных нанокристаллов CdSe/CdS и CdSe/CdS/ZnS с помощью конфокальной микроскопии. Размеры нанокристаллов охарактеризованы с помощью атомно-силовой микроскопии. Результаты измерения автокорреляционной функции $g^{(2)}(\tau)$ показали, что отдельные нанокристаллы CdSe/CdS/ZnS, излучающие в полосе с максимумом 636 нм с временем жизни возбужденного состояния около 27 нс, могут являться источниками одиночных фотонов. Однако при этом обнаружено, что для таких источников характерен эффект мерцания интенсивности люминесценции, проявляющийся в виде провалов на треке интенсивности.

Раздел 3.2 посвящен изучению люминесцентных свойств одиночных NV- и SiV-центров в нанодиамазах. В пункте 3.2.1 в качестве объектов были использованы промышленно выпускаемые нанодиамазы, полученные методом высокого давления и высокой температуры (HPHT) с характерным размером около 10-100 нм. В таких нанодиамазах при синтезе естественным путем попадают атомы азота, в связи с чем в рассмотренных нанодиамазах наблюдалась люминесценция отрицательно заряженных NV^- центров. Были выявлены нанодиамазы с одиночными центрами, для которых характерна однофотонная статистика. Излучение таких источников попадало в спектральный

диапазон от 560 нм до 800 нм с максимумом на длине волны 680 нм, а также наблюдалась слабо выраженная бесфонная линия NV^- центра вблизи 637 нм (см. рис. 1). В пункте 3.2.2 были исследованы синтетические наноалмазы, содержащие отрицательно заряженные центры кремний-вакансия (SiV^-), и предоставленные Лабораторией углеродной нанофотоники Института Общей Физики им. Прохорова под руководством к.ф.-м.н. И.И. Власова. В отличие от азотно-вакансионных NV -центров, в спектре фотолюминесценции одиночных SiV -центров наблюдалась узкая бесфонная линия с шириной порядка 5 нм даже при комнатной температуре. Установлено, что для одиночных SiV -центров время жизни возбужденного состояния составило около 1.2 нс. Таким образом, было экспериментально подтверждено, что исследованные NV - и SiV -центры в наноалмазах могут являться источниками одиночных фотонов, при этом для наноалмазов не наблюдается мерцание и изменение интенсивности излучения во времени.

В разделе 3.3 приведены результаты исследования люминесцентных свойств наночастиц гексагонального нитрида бора с размерами менее 15 нм, синтезированные одностадийным методом низкотемпературного аммонолиза борной кислоты и последующего отжига. Образцы были любезно предоставлены научно-исследовательским центром «Неорганические наноматериалы» (МИСиС) под руководством д.ф.-м.н., профессора Д.В. Штанского. Синтез наночастиц описан в пункте 3.3.1. В пункте 3.3.2 измерения спектров люминесценции различных источников света в наночастицах показали, что для большинства ярких областей характерны максимумы в диапазоне от 570 до 590 нм, и эти максимумы идентифицированы как бесфонные линии. Для части обнаруженных излучателей наблюдалась однофотонная статистика на основании измерений автокорреляционной функции $g^{(2)}(\tau)$, причем значение функции $g^{(2)}(\tau = 0)$ зависело от мощности лазерного возбуждения. Основная причина увеличения значения $g^{(2)}(\tau = 0)$ с ростом мощности возбуждения заключалась в том, что при больших мощностях возникали процессы группировки фотонов ($g^{(2)}(\tau) > 1$), связанные с наличием долгоживущих (метастабильных) промежуточных безызлучательных состояний в дефектах нитрида бора. Установлено, что излучатели могут быть описаны с помощью модели с пятью уровнями энергий, где три дополнительных уровня соответствуют безызлучательным метастабильным состояниям с временами жизни

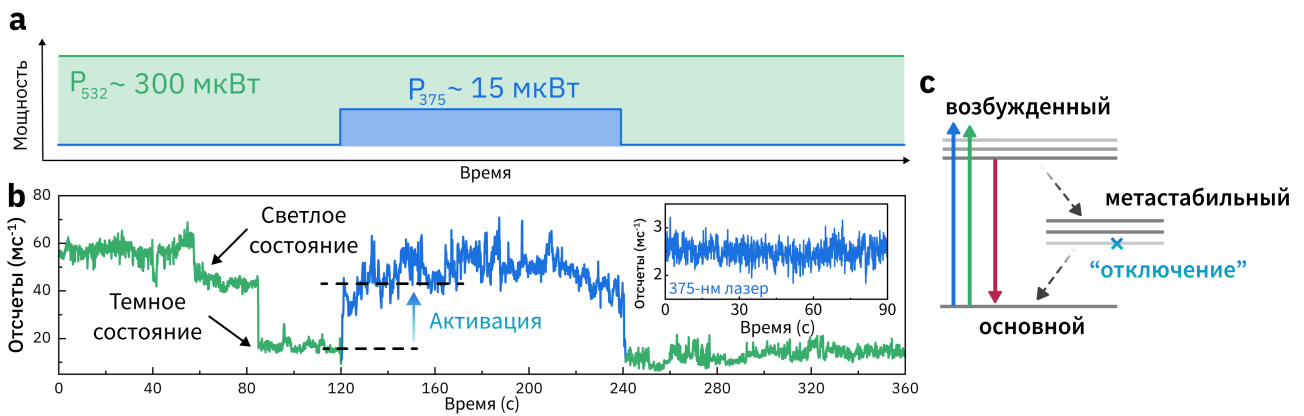


Рис. 2 — Оптически стимулированное изменение интенсивности излучения в наночастице нитрида бора. **а** - Зависимость интенсивности возбуждения лазерами 532 нм (зеленая область) и 375 нм (синяя область) во времени. **б** - Зависимость интенсивности люминесценции наночастицы от времени. Вставка: зависимость интенсивности люминесценции для того же излучателя от времени при возбуждении только лазером 375 нм. **с** - Структура энергетических уровней излучающего центра в нитриде бора, описывающая поведение излучателя.

более 1 мкс. Наличие этих метастабильных состояний также приводит к наблюдаемому в эксперименте эффекту мерцания интенсивности люминесценции, в том числе когда излучатель может переключаться между состояниями с низкой («темное» состояние) и высокой («светлое» состояние) интенсивностью люминесценции.

В пункте 3.3.3 рассмотрены процессы, приводящие к появлению группировки фотонов в излучателях на основе наночастиц нитрида бора. Для объяснения этого эффекта были проведены эксперименты с дополнительным ультрафиолетовым возбуждением 375 нм. Экспериментально показано, что дополнительная оптическая накачка приводит к эмиссии электронов из этих долгоживущих локализованных состояний, форсировав переход излучающего центра в наночастице в «светлое» состояние, как показано на рис. 2. Пункт 3.3.4 посвящен моделированию процессов, которые могут приводить к опустошению локализованных метастабильных состояний и переходу излучающего центра в «светлое» состояние. Оказалось, что роль дополнительного лазера (375 нм) заключалась в оптической «перекачке» электронов, локализованных в долгоживущих состояниях, а также в перезаполнении этих состояний электронами.

В пункте 3.3.5 представлены результаты измерений пространственных распределений интенсивности люминесценции наночастиц нитрида бора, полученные при возбуждении 532 нм, а также при дополнительном возбуждении 375 нм. Продемонстрировано увеличение контраста люминесцентных изображений, содержащих наночастицы нитрида бора при одновременном возбуждении двумя лазерами. Сделан вывод, что одним из возможных практических применений таких объектов является их использование в микроскопии с субволновым разрешением.

В разделе 3.4 проведено исследование люминесцентных свойств источников одиночных фотонов, создаваемых в многослойных пластинах (чешуйках) гексагонального нитрида бора (hBN). Образцы были любезно предоставлены научной группой под руководством д.ф.-м.н. А.Ю. Кунцевича из Центра высокотемпературной сверхпроводимости ФИАН. В пункте 3.4.1 описаны основные этапы подготовки образцов с hBN. Отдельные пластины hBN толщиной 5-100 нм отслаивали от коммерчески доступного макроскопического кристалла гексагонального нитрида бора, синтезированного методом высокого давления и температуры, и переносились на подложки, которые обрабатывали ионами аргона для создания структурных дефектов в решетке hBN, с последующим отжигом на воздухе при температуре 750°C.

В пункте 3.4.2 представлены результаты исследования многослойных пластин hBN микрометрового размера в лазерном сканирующем конфокальном микроскопе при непрерывном (532 нм) или импульсном (545 нм) оптическом возбуждении. Обнаружено, что отдельные пластины содержат от нескольких штук до десятков источников одиночных фотонов, расположенных на расстоянии порядка 1-2 мкм от латеральных границ, и получившихся в результате обработки поверхности образца пучком ионов аргона. На основе результатов измерений автокорреляционных функций показано, что люминесцентные источники могут испускать одиночные фотоны по требованию в видимой области спектра при комнатной температуре, при этом вероятность одновременной регистрации двух и более фотонов была менее 15% при непрерывном лазерном возбуждении (см. рис. 3а, б). Был сделан вывод о том, что такие центры могут быть описаны в модели излучателя с тремя уровнями энергии при наличии промежуточного метастабильного состояния.

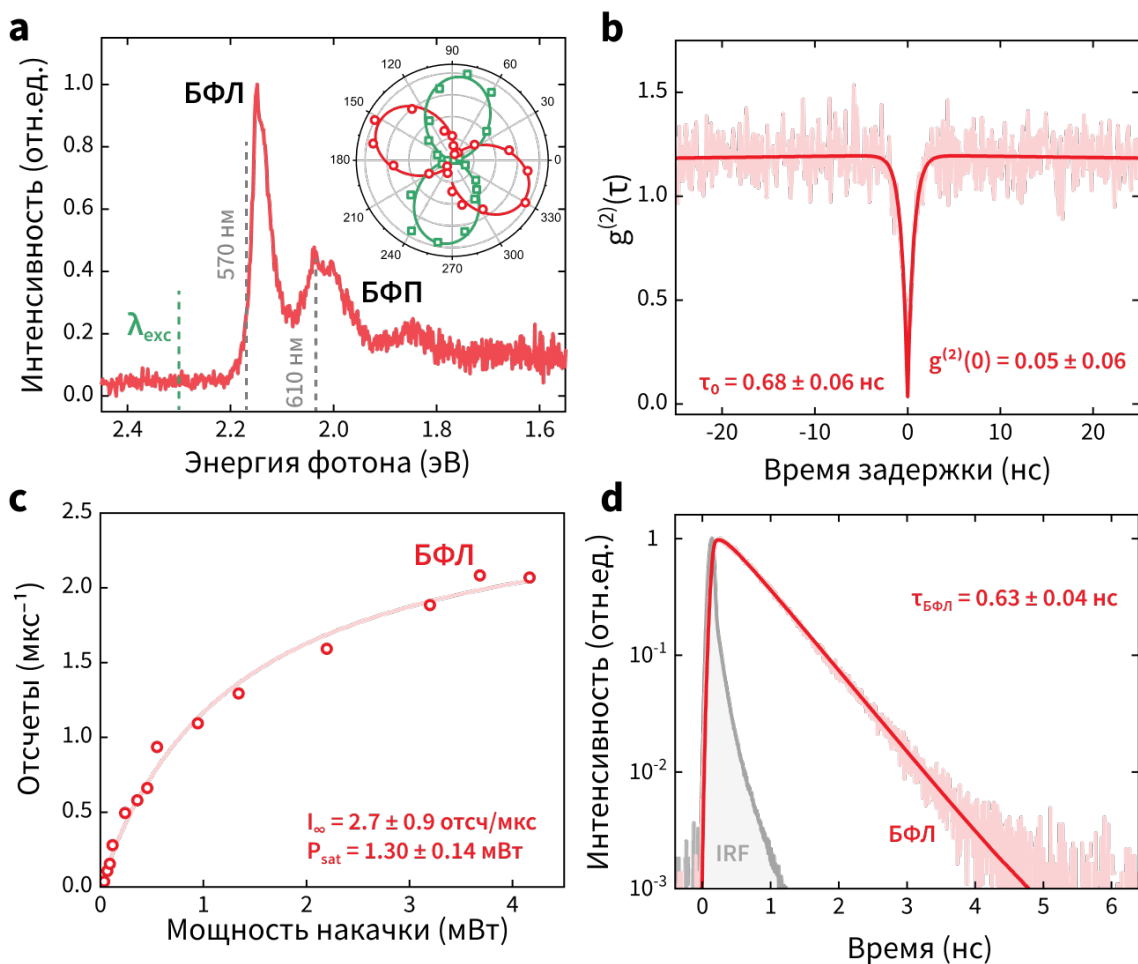


Рис. 3 — **a** - Спектр фотолюминесценции излучателя в hBN при возбуждении 532 нм. Вставка: зависимость интенсивности люминесценции от угла линейной поляризации возбуждения (зеленые полые квадраты) или от угла линейной поляризации в канале регистрации излучения (красные полые круги). **b** - Автокорреляционная функция $g^{(2)}(\tau)$ для интенсивности, зарегистрированной на длине волны бесфононной линии. **c** - Насыщение интенсивности люминесценции от мощности накачки. **c** - Спектрально разрешенная релаксация интенсивности люминесценции излучателя при импульсном возбуждении 530 нм и частотой следования импульсов 80 МГц. Аппаратная функция (IRF) отклика регистрирующей системы указана серым цветом. БФЛ – бесфононная линия, БФП – боковая фононная полоса.

Результаты исследования этих излучателей также показали, что излучение является линейно поляризованным вдоль поверхности пластин, а его интенсивность на длине волны бесфононной линии (БФЛ) может превышать $2 \cdot 10^6$ отсчетов в секунду при непрерывном лазерном возбуждении (рис. 3с). Более того, было обнаружено, что у таких излучателей время жизни возбужденного состояния составляет 0.63 ± 0.4 нс без использования дополнительных усиливающих сред. Такое время жизни объяснено особенностью стро-

ения возникающих дефектов в слое нитрида бора и локального окружения вблизи наблюдаемых центров. В пункте 3.4.2 описано поведение излучающих центров в hBN при воздействии лазерной накачки мощностью более 4 мВт, в том числе переходы этих центров в «темное» состояние. Наличие «темных» состояний объяснено захватом электронов соседними локализованными состояниями из излучающих центров через зону проводимости. С помощью моделирования динамики релаксации электронного возбуждения получены оценки скоростей переходов для исследованных в эксперименте излучающих центров, у которых наблюдались «темные» и «светлые» состояния. В пункте 3.4.4 обсуждена природа экспериментально наблюдаемых излучателей в гексагональном нитриде бора и их возможное строение с учетом данных из литературы.

Результаты третьей главы опубликованы в работах [A1, A2, A7, A10].

В четвертой главе рассмотрены возможности увеличения эффективности люминесценции систем на основе ансамблей излучателей с помощью металлических наноплазмонных антенн различных конфигураций. В качестве основы для создания наноплазмонных антенн были выбраны кубические, призматические и сферические наночастицы, помещенные на поверхность металлической пленки, а также внутри цилиндрических углублений в металле. В разделе 4.1 приведены результаты исследования характеристик наноплазмонных антенн на основе наночастиц, расположенных на металлической поверхности. Проанализировано, каким образом форма наночастиц, материал подложки и расстояние между наночастицей и поверхностью металла влияет на спектральное положение плазмонного резонанса и амплитуду электрического поля вблизи наноплазмонных антенн.

Приведены экспериментальные результаты исследования люминесцентных свойств рутениевого комплекса $Ru(bpy)_3(PF_6)_2$, излучающего в спектральной полосе с максимумом на длине волны 620 нм, в наноплазмонных антеннах на основе пятиугольных наностержней и шестиугольных нанопризм на плоской поверхности алюминия. Показано, что в таких наноплазмонных антеннах достигается сокращение времени жизни возбужденного состояния рутениевого комплекса с 850 пс до 7 пс в сравнении с молекулами комплекса, нанесенными на стеклянную подложку. При этом было обнаружено увеличение интенсивности испускания слоя молекул в наноплазмонной антенне более чем на порядок по сравнению с интенсивностью излучения этих молекул на поверхности пленки алюминия.

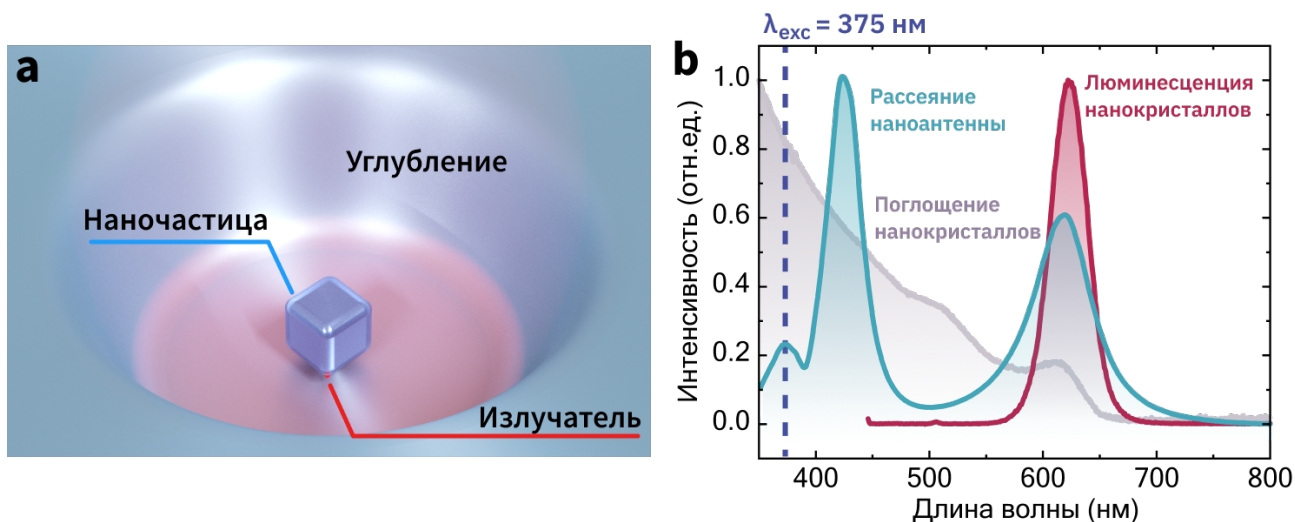


Рис. 4 — **a** - 3D-изображение наночастицы внутри углубления в металле. **b** - Спектры люминесценции (красная зависимость), поглощения (серая зависимость) нанокристаллов CdSe/CdS в гексане и спектр сечения рассеяния для нанокубика на поверхности алюминия, полученный на основе моделирования. Пунктирной вертикальной линией показана длина волны лазерного возбуждения для исследования наночастицы.

Сделан вывод, что увеличение скорости излучательной релаксации определяется эффектом Парселла.

В разделе 4.2 приведены результаты исследования эффективности излучения наночастиц на основе наночастиц, помещенных внутри наноглублений в металле. Сравнение эффективности было проведено с наночастицами на поверхности плоской металлической пленки. В пункте 4.2.1 рассмотрены наночастицы на основе серебряных наночастиц кубической формы на плоской поверхности серебра. На основе компьютерного моделирования получены спектральные зависимости мощности излучения диполя, размещенного внутри такой наночастицы. Показано, что такие наночастицы обладают недостатками, связанными с потерями энергии излучения в самом металле, а также с уходом энергии в латеральном направлении в результате формирования поверхностных плазмонов. Поэтому для уменьшения этих потерь в настоящей работе было предложено использовать блокирование латерального ухода энергии за счет создания боковых металлических стенок.

Пункт 4.2.2 посвящен моделированию плазмонных резонансов, возникающих в наночастице на основе серебряной кубической наночастицы (нанокубика) внутри серебряного квадратного и цилиндрического углубления (рис. 4а). Результаты моделирования зависимостей сечения рассеяния и мощ-

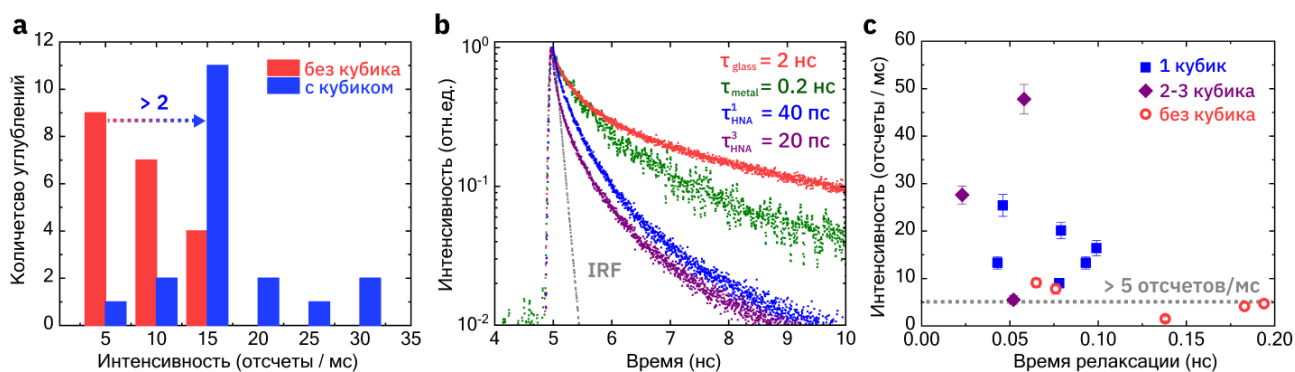


Рис. 5 — **а** - Распределение количества углублений с нанокубиками (синие столбики) и без них (красные столбики) по интенсивности люминесценции помещенных в них нанокристаллов CdSe/CdS. **б** - Релаксация люминесценции слоя нанокристаллов на стекле (красная зависимость), на поверхности алюминия (зеленая зависимость) и в nanoantenne с одним (синяя зависимость) и тремя нанокубиками (фиолетовая зависимость). Зависимость, указанная серым цветом, отвечает аппаратной функции (IRF) регистрирующей системы. **в** - Связь интенсивности и среднего времени релаксации люминесценции нанокристаллов в отдельных углублениях.

ности излучения от длины волны для nanoantenn, состоящих из наночастиц кубической формы, помещенных внутрь углубления кубической, а также цилиндрической формы в серебре, показали, что взаимодействие собственных мод плазмонной наночастицы с углублением со стороной 680 нм и глубиной 300 нм приводит к расщеплению этих зависимостей. Это расщепление объяснено резонансами Фано; максимальная величина расщепления в 0.21 эВ была достигнута для кубического углубления со стороной 700 нм и глубиной 300 нм с кубической наночастицей со стороной 75 нм. При этом в спектральном минимуме между расщепленными модами было достигнуто наименьшее поглощение света наночастицей.

В разделе 4.3 приведены результаты экспериментального исследования nanoantenn на основе серебряных нанокубиков внутри цилиндрических алюминиевых углублений. Описаны основные этапы изготовления упорядоченной структуры цилиндрических углублений с помещенными в них серебряными наночастицами кубической формы, а также излучателями на основе коллоидных нанокристаллов CdSe/CdS (рис. 4). Образцы с металлическими углублениями были любезно предоставлены коллегами П.В. Лега, А.П. Орловым, А.С. Ильиным из Института радиотехники и электроники им. В.А. Котельникова РАН.

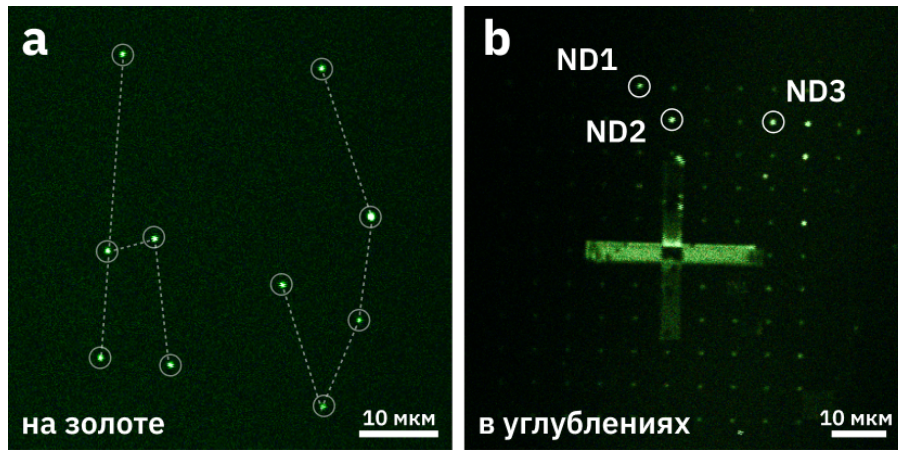


Рис. 6 — Пространственное распределение интенсивности люминесценции SiV-центров в наноалмазах, размещенных на поверхности золотой пленки (а) и в углублениях (б). Кругсками обозначены отдельные наноалмазы.

Представлены результаты измерений люминесцентных характеристик нанокристаллов в металлических углублениях. Установлено, что помещение серебряных нанокубиков со стороной 80-85 нм в массив цилиндрических углублений диаметром 700 нм и глубиной 300 нм в алюминии увеличивает интенсивность излучения нанокристаллов более чем в 2 раза по сравнению с интенсивностью их излучения в углублениях без нанокубиков (см. рис. 5). При этом время жизни возбужденных состояний коллоидных нанокристаллов CdSe/CdS, помещенных между дном углублений и нанокубиками, сокращается до 80 раз по сравнению с нанокристаллами, нанесенными на поверхность стеклянной подложки. Сделан вывод, что уменьшение времени жизни возбужденных состояний и интенсивности излучения определяется эффектом Парселла. В результате моделирования распределения напряженности электрического поля в наноантенне было обнаружено, что выбор направления поляризации возбуждающего излучения может приводить к изменению интенсивности излучения системы на порядок величины.

Раздел 4.4 посвящен экспериментальному исследованию люминесценции отрицательно заряженных центров кремний-вакансия (SiV) в наноалмазах, помещенных внутрь углублений в золоте. Контролируемое размещение одиночных наноалмазов на поверхности золота и в заданных углублениях (рис. 6) было произведено с помощью микропипеток. Образцы с наноалмазами были предоставлены Лабораторией углеродной нанофотоники Института Общей Физики им. Прохорова под руководством к.ф.-м.н. И.И. Власова. Результаты измерений показали, что помещение наноалмазов с излучающими

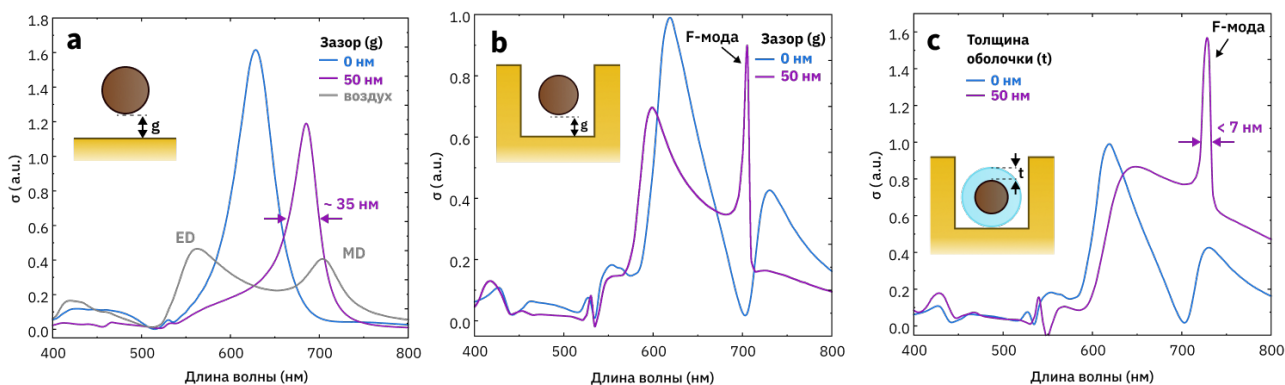


Рис. 7 — **a**, **b** - Результаты моделирования зависимостей сечений рассеяния наночастицы на основе кремниевых наночастиц на плоской поверхности (**a**) золота и внутри цилиндрического углубления (**b**) и (**c**) от длины волны возбуждающего излучения при различных толщинах зазора (или толщины оболочки SiO_2) между наночастицей и поверхностью золота.

на длине волны 738 нм SiV-центрами в цилиндрические углубления в золоте со средним диаметром 500 нм и глубиной 220 нм приводит к увеличению интенсивности люминесценции этих центров до 62 раз по сравнению с такими центрами в наноалмазах, нанесенных на плоскую поверхность золотой пленки. Экспериментально получено, что увеличение интенсивности люминесценции определяется не только эффектом Парселла, но и другими механизмами, в частности, связанными с оптически стимулированной активацией люминесценции SiV-центров в наноалмазе, усиленной благодаря взаимодействию с поверхностными плазмонами внутри металлического углубления.

В разделе 4.5 приведены результаты моделирования резонансных систем на основе сферических наночастиц из кремния на поверхности золотой пленки, а также в цилиндрических углублениях в золоте. Установлено влияние геометрических размеров компонентов системы на спектральное положение и амплитуду возникающих в ней резонансов. Показано, что для наночастиц кремния диаметром 180 нм, расположенных внутри цилиндрических углублений диаметром 620 нм и глубиной 300 нм, достигается наименьшая ширина резонансной зависимости, то есть наибольшая добротность, превышающая 100, в области 705 нм (F-мода) по сравнению с аналогичной наночастицей на поверхности золотой плёнки (рис. 7). Для достижения высоких добротностей в реальных экспериментах за счет увеличения расстояния между наночастицей и поверхностью дна углубления было предложено использовать наночастицы с оболочкой из диоксида кремния, а вместо цилиндриче-

ского углубления использовать углубления конической формы. Это должно позволить удерживать наночастицу в заданном положении без необходимости дополнительного контроля ее положения в углублении. Таким образом, предложенная геометрия позволяет на порядок величины увеличить эффективность излучения источников, расположенных на поверхности или внутри диэлектрической оболочки наночастицы.

Результаты четвертой главы опубликованы в работах [А3–А6, А8, А9, А11].

В **заключении** диссертационной работы сформулированы следующие основные результаты:

1. Получены люминесцентные центры с однофотонной статистикой в наночастицах гексагонального нитрида бора с размерами менее 15 нм. Показано, что переключение таких центров из «темного» состояния люминесценции в «светлое» достигается с использованием ультрафиолетового излучения 375 нм, что увеличивает контраст люминесцентных изображений с наночастицами до двух раз.
2. Созданы источники одиночных фотонов в пластинах многослойного гексагонального нитрида бора путем обработки пластин ионами аргона с последующим высокотемпературным отжигом на воздухе при 750°C. Для таких источников продемонстрировано значение автокорреляционной функции $g^{(2)}(0) = 0.05 \pm 0.06$, при этом интенсивность регистрируемого излучения в насыщении составляет $(2.7 \pm 0.9) \cdot 10^6$ отсчетов в секунду и время жизни возбужденного состояния – 0.63 ± 0.04 нс при комнатной температуре.
3. Продемонстрировано сокращение времени жизни возбужденного состояния нанокристаллов CdSe/CdS, помещенных в алюминиевое углубление с серебряными нанокубиками, в 40 раз с 1.9 ± 0.2 нс до 43 ± 8 пс с одним нанокубиком, а в случае с тремя нанокубиками – до 80 раз (до 22 ± 5 пс) по сравнению с излучением нанокристаллов на стекле.
4. Показано увеличение интенсивности излучения слоя нанокристаллов CdSe/CdS, помещенных в алюминиевое углубление с серебряными нанокубиками, более чем в 2 раза по сравнению с интенсивностью излучения нанокристаллов в углублениях без нанокубиков.

5. Получено, что интенсивность излучения ансамблей SiV-центров в отдельных наноалмазах, увеличивается более чем в 8 раз при помещении этих наноалмазов внутрь цилиндрических углублений в золоте по сравнению с излучением тех же наноалмазов на плоской поверхности золотой пленки за счет эффекта оптически стимулированного изменения зарядового состояния SiV-центров.
6. По результатам численного моделирования продемонстрировано, что добротность наноантенны на основе сферической наночастицы кремния диаметром 180 нм внутри цилиндрического углубления в золоте превышает 100.

Список публикаций автора по теме диссертации

Публикации в рецензируемых журналах

- [A1] A. V. Gritsienko, A. T. Matveev, N. S. Kurochkin, G. R. Voskanyan, D. A. Shcherbakov, D. V. Shtansky, and A. G. Vitukhnovsky, “Photocontrol of single-photon generation in boron nitride nanoparticles: Implications for quantum photon sources, sub-diffraction nanoscopy, and bioimaging,” *ACS Applied Nano Materials*, vol. 5, no. 8, pp. 10462–10470, 2022.
- [A2] A. V. Gritsienko, A. Duleba, M. V. Pugachev, N. S. Kurochkin, I. I. Vlasov, A. G. Vitukhnovsky, and A. Y. Kuntsevich, “Photodynamics of bright subnanosecond emission from pure single-photon sources in hexagonal boron nitride,” *Nanomaterials*, vol. 12, no. 24, p. 4495, 2022.
- [A3] A. V. Gritsienko, N. S. Kurochkin, A. G. Vitukhnovsky, A. S. Selyukov, I. V. Taydakov, and S. P. Eliseev, “Radiative characteristics of nanopatch antennas based on plasmonic nanoparticles of various geometry and tris (2,2'-bipyridine) ruthenium (ii) hexafluorophosphate,” *Journal of Physics D: Applied Physics*, vol. 52, no. 32, p. 325107, 2019.
- [A4] A. V. Gritsienko, N. S. Kurochkin, P. V. Lega, A. P. Orlov, A. S. Ilin, S. P. Eliseev, and A. G. Vitukhnovsky, “Hybrid cube-in-cup nanoantenna: Towards ordered photonics,” *Nanotechnology*, vol. 33, no. 1, p. 015201, 2021.

- [A5] A. M. Romshin, A. V. Gritsienko, P. V. Lega, A. P. Orlov, A. S. Ilin, A. K. Martyanov, V. S. Sedov, I. I. Vlasov, and A. G. Vitukhnovsky, “Effectively enhancing silicon-vacancy emission in a hybrid diamond-in-pit microstructure,” *Laser Physics Letters*, vol. 20, no. 1, p. 015206, 2022.
- [A6] A. V. Gritsienko, A. V. Gavrilyuk, N. S. Kurochkin, and A. G. Vitukhnovsky, “High-q resonances in silicon nanoparticle coupled to nanopit,” *Optical and Quantum Electronics*, vol. 56, no. 5, p. 857, 2024.
- [A7] A. G. Vitukhnovsky, D. A. Kolymagin, A. V. Gritsienko, I. V. Dushkin, A. V. Pisarenko, A. I. Prokhodtsov, M. I. Danilkin, and G. V. Prutskov, “Femtosecond two-photon photopolymerization—creating 3D microstructures for optical applications,” *Bulletin of the Russian Academy of Sciences: Physics*, pp. 1–6, 2023

Публикации в сборниках трудов конференций

- [A8] A. V. Gritsienko, N. S. Kurochkin, A. G. Vitukhnovsky, and S. P. Eliseev, “Optical properties of nanopatch antennas based on plasmonic nanoparticles and ruthenium complex,” *Journal of Physics: Conference Series*, vol. 1439, no. 1, p. 012020, 2020.
- [A9] A. V. Gritsienko, S. P. Eliseev, N. S. Kurochkin, and A. G. Vitukhnovsky, “Interaction effects of nano-patch antenna with external resonator,” *AIP Conference Proceedings*, vol. 2300, no. 1, p. 020042, 2020.
- [A10] N. S. Kurochkin, S. P. Eliseev, V. V. Sychev, A. V. Gritsienko, V. S. Gorelik, and A. G. Vitukhnovsky, “Single photon sources based on HPHT nanodiamonds,” *Journal of Physics: Conference Series*, vol. 2015, no. 1, p. 012053, 2021.
- [A11] A. V. Gritsienko, N. Kurochkin, P. V. Lega, A. P. Orlov, A. S. Ilin, S. P. Eliseev, and A. G. Vitukhnovsky, “Optical properties of new hybrid nanoantenna in submicron cavity,” *Journal of Physics: Conference Series*, vol. 2015, no. 1, p. 012052, 2021.

Список литературы

- [1] C. J. Chunnillall, I. P. Degiovanni, S. Kück, I. Müller, and A. G. Sinclair, “Metrology of single-photon sources and detectors: a review,” *Optical Engineering*, vol. 53, no. 8, pp. 081910–081910, 2014.
- [2] G. Zhang, Y. Cheng, J.-P. Chou, and A. Gali, “Material platforms for defect qubits and single-photon emitters,” *Applied Physics Reviews*, vol. 7, no. 3, 2020.
- [3] H. J. Kimble, “The quantum internet,” *Nature*, vol. 453, no. 7198, pp. 1023–1030, 2008.
- [4] J. S. Sidhu, S. K. Joshi, M. Gündoğan, T. Brougham, D. Lowndes, L. Mazzarella, M. Krutzik, S. Mohapatra, D. Dequal, G. Vallone, *et al.*, “Advances in space quantum communications,” *IET Quantum Communication*, vol. 2, no. 4, pp. 182–217, 2021.
- [5] T. K. Paraiso, T. Roger, D. G. Marangon, I. De Marco, M. Sanzaro, R. I. Woodward, J. F. Dynes, Z. Yuan, and A. J. Shields, “A photonic integrated quantum secure communication system,” *Nature Photonics*, vol. 15, no. 11, pp. 850–856, 2021.
- [6] A. B. D. Shaik and P. Palla, “Optical quantum technologies with hexagonal boron nitride single photon sources,” *Scientific reports*, vol. 11, no. 1, p. 12285, 2021.
- [7] C. H. Bennett and G. Brassard, “Quantum cryptography: Public key distribution and coin tossing,” *Theoretical computer science*, vol. 560, pp. 7–11, 2014.
- [8] R. Alléaume, F. Treussart, G. Messin, Y. Dumeige, J.-F. Roch, A. Beveratos, R. Brouri-Tualle, J.-P. Poizat, and P. Grangier, “Experimental open-air quantum key distribution with a single-photon source,” *New Journal of physics*, vol. 6, no. 1, p. 92, 2004.
- [9] B. Sanders, J. Vuckovic, and P. Grangier, “Single photons on demand,” *Europhysics news*, vol. 36, no. 2, pp. 56–8, 2005.

- [10] M. Rau, T. Heindel, S. Unsleber, T. Braun, J. Fischer, S. Frick, S. Nauerth, C. Schneider, G. Vest, S. Reitzenstein, *et al.*, “Free space quantum key distribution over 500 meters using electrically driven quantum dot single-photon sources—a proof of principle experiment,” *New Journal of Physics*, vol. 16, no. 4, p. 043003, 2014.
- [11] A. Ahmadian, S. Tofghi, and R. R. Malekfar, “An investigation of the impacts of available real single-photon sources on quantum communication secure length,” *Jordan Journal of Physics*, vol. 16, no. 1, pp. 15–24, 2023.
- [12] C. Couteau, “Spontaneous parametric down-conversion,” *Contemporary Physics*, vol. 59, no. 3, pp. 291–304, 2018.
- [13] Y. Qu, J. Wu, Y. Yang, Y. Zhang, Y. Liang, H. El Dirani, R. Crochemore, P. Demongodin, C. Sciancalepore, C. Grillet, *et al.*, “Enhanced four-wave mixing in silicon nitride waveguides integrated with 2d layered graphene oxide films,” *Advanced Optical Materials*, vol. 8, no. 23, p. 2001048, 2020.
- [14] U. Sinha, S. N. Sahoo, A. Singh, K. Joarder, R. Chatterjee, and S. Chakraborti, “Single-photon sources,” *Optics and Photonics News*, vol. 30, no. 9, pp. 32–39, 2019.
- [15] I. Aharonovich, D. Englund, and M. Toth, “Solid-state single-photon emitters,” *Nature Photonics*, vol. 10, no. 10, p. 631, 2016.
- [16] L. Caspani, C. Xiong, B. J. Eggleton, D. Bajoni, M. Liscidini, M. Galli, R. Morandotti, and D. J. Moss, “Integrated sources of photon quantum states based on nonlinear optics,” *Light: Science & Applications*, vol. 6, no. 11, pp. e17100–e17100, 2017.
- [17] I. I. Vlasov, A. A. Shiryaev, T. Rendler, S. Steinert, S.-Y. Lee, D. Antonov, M. Vörös, F. Jelezko, A. V. Fisenko, L. F. Semjonova, *et al.*, “Molecular-sized fluorescent nanodiamonds,” *Nature nanotechnology*, vol. 9, no. 1, pp. 54–58, 2014.
- [18] L. P. Neukirch, E. Von Haartman, J. M. Rosenholm, and A. N. Vamivakas, “Multi-dimensional single-spin nano-optomechanics with a levitated nanodiamond,” *Nature Photonics*, vol. 9, no. 10, pp. 653–657, 2015.

- [19] K. F. Mak and J. Shan, “Photonics and optoelectronics of 2d semiconductor transition metal dichalcogenides,” *Nature Photonics*, vol. 10, no. 4, p. 216, 2016.
- [20] M. Kianinia, C. Bradac, B. Sontheimer, F. Wang, T. T. Tran, M. Nguyen, S. Kim, Z.-Q. Xu, D. Jin, A. W. Schell, *et al.*, “All-optical control and super-resolution imaging of quantum emitters in layered materials,” *Nature communications*, vol. 9, no. 1, pp. 1–8, 2018.
- [21] S. I. Bogdanov, A. Boltasseva, and V. M. Shalaev, “Overcoming quantum decoherence with plasmonics,” *Science*, vol. 364, no. 6440, pp. 532–533, 2019.
- [22] J. P. Reithmaier, G. Sęk, A. Löffler, C. Hofmann, S. Kuhn, S. Reitzenstein, L. Keldysh, V. Kulakovskii, T. Reinecke, and A. Forchel, “Strong coupling in a single quantum dot–semiconductor microcavity system,” *Nature*, vol. 432, no. 7014, pp. 197–200, 2004.
- [23] T. Yoshie, A. Scherer, J. Hendrickson, G. Khitrova, H. Gibbs, G. Rupper, C. Ell, O. Shechkin, and D. Deppe, “Vacuum Rabi splitting with a single quantum dot in a photonic crystal nanocavity,” *Nature*, vol. 432, no. 7014, pp. 200–203, 2004.
- [24] S. I. Bozhevolnyi and J. B. Khurgin, “Fundamental limitations in spontaneous emission rate of single-photon sources,” *Optica*, vol. 3, no. 12, pp. 1418–1421, 2016.
- [25] M. S. Tame, K. McEnery, Ş. Özdemir, J. Lee, S. A. Maier, and M. Kim, “Quantum plasmonics,” *Nature Physics*, vol. 9, no. 6, pp. 329–340, 2013.
- [26] M. I. Stockman, M. F. Kling, U. Kleineberg, and F. Krausz, “Attosecond nanoplasmonic-field microscope,” *Nature Photonics*, vol. 1, no. 9, pp. 539–544, 2007.
- [27] S. Wein, N. Lauk, R. Ghobadi, and C. Simon, “Feasibility of efficient room-temperature solid-state sources of indistinguishable single photons using ultrasmall mode volume cavities,” *Physical Review B*, vol. 97, no. 20, p. 205418, 2018.

- [28] T. B. Hoang, G. M. Akselrod, and M. H. Mikkelsen, “Ultrafast room-temperature single photon emission from quantum dots coupled to plasmonic nanocavities,” *Nano letters*, vol. 16, no. 1, pp. 270–275, 2016.
- [29] J. Braumüller, M. Marthaler, A. Schneider, A. Stehli, H. Rotzinger, M. Weides, and A. V. Ustinov, “Analog quantum simulation of the Rabi model in the ultra-strong coupling regime,” *Nature communications*, vol. 8, no. 1, pp. 1–8, 2017.
- [30] K. Santhosh, O. Bitton, L. Chuntonov, and G. Haran, “Vacuum Rabi splitting in a plasmonic cavity at the single quantum emitter limit,” *Nature communications*, vol. 7, no. 1, pp. 1–5, 2016.
- [31] M. Pelton, “Modified spontaneous emission in nanophotonic structures,” *Nature Photonics*, vol. 9, no. 7, p. 427, 2015.
- [32] I. M. Palstra, H. M. Doeleman, and A. F. Koenderink, “Hybrid cavity-antenna systems for quantum optics outside the cryostat?,” *Nanophotonics*, vol. 8, no. 9, pp. 1513–1531, 2019.
- [33] G. Sun and J. B. Khurgin, “Theory of optical emission enhancement by coupled metal nanoparticles: An analytical approach,” *Applied Physics Letters*, vol. 98, no. 11, p. 113116, 2011.
- [34] A. E. Krasnok, A. P. Slobozhanyuk, C. R. Simovski, S. A. Tretyakov, A. N. Poddubny, A. E. Miroshnichenko, Y. S. Kivshar, and P. A. Belov, “An antenna model for the Purcell effect,” *Scientific reports*, vol. 5, p. 12956, 2015.
- [35] A. Rose, T. B. Hoang, F. McGuire, J. J. Mock, C. Ciraci, D. R. Smith, and M. H. Mikkelsen, “Control of radiative processes using tunable plasmonic nanopatch antennas,” *Nano letters*, vol. 14, no. 8, pp. 4797–4802, 2014.
- [36] G. M. Akselrod, C. Argyropoulos, T. B. Hoang, C. Ciraci, C. Fang, J. Huang, D. R. Smith, and M. H. Mikkelsen, “Probing the mechanisms of large Purcell enhancement in plasmonic nanoantennas,” *Nature Photonics*, vol. 8, no. 11, p. 835, 2014.
- [37] S. I. Bogdanov, M. Y. Shalaginov, A. S. Lagutchev, C.-C. Chiang, D. Shah, A. S. Baburin, I. A. Ryzhikov, I. A. Rodionov, A. V. Kildishev, A. Boltasseva,

- et al.*, “Ultrabright room-temperature sub-nanosecond emission from single nitrogen-vacancy centers coupled to nanopatch antennas,” *Nano letters*, vol. 18, no. 8, pp. 4837–4844, 2018.
- [38] M. Neumann, X. Wei, L. Morales-Inostroza, S. Song, S.-G. Lee, K. Watanabe, T. Taniguchi, S. Gotzinger, and Y. H. Lee, “Organic molecules as origin of visible-range single photon emission from hexagonal boron nitride and mica,” *ACS nano*, vol. 17, no. 12, pp. 11679–11691, 2023.
- [39] N. Mendelson, D. Chugh, J. R. Reimers, T. S. Cheng, A. Gottscholl, H. Long, C. J. Mellor, A. Zettl, V. Dyakonov, P. H. Beton, *et al.*, “Identifying carbon as the source of visible single-photon emission from hexagonal boron nitride,” *Nature materials*, vol. 20, no. 3, pp. 321–328, 2021.
- [40] M. G. Dastidar, I. Thekkooden, P. K. Nayak, and V. P. Bhallamudi, “Quantum emitters and detectors based on 2d van der waals materials,” *Nanoscale*, vol. 14, no. 14, pp. 5289–5313, 2022.
- [41] J. C. Loredó, N. A. Zakaria, N. Somaschi, C. Anton, L. De Santis, V. Giesz, T. Grange, M. A. Broome, O. Gazzano, G. Coppola, *et al.*, “Scalable performance in solid-state single-photon sources,” *Optica*, vol. 3, no. 4, pp. 433–440, 2016.
- [42] J.-P. So, K.-Y. Jeong, J. M. Lee, K.-H. Kim, S.-J. Lee, W. Huh, H.-R. Kim, J.-H. Choi, J. M. Kim, Y. S. Kim, *et al.*, “Polarization control of deterministic single-photon emitters in monolayer WSe₂,” *Nano letters*, vol. 21, no. 3, pp. 1546–1554, 2021.
- [43] J. Lee, V. Leong, D. Kalashnikov, J. Dai, A. Gandhi, and L. A. Krivitsky, “Integrated single photon emitters,” *AVS Quantum Science*, vol. 2, no. 3, 2020.
- [44] Y. Kan and S. I. Bozhevolnyi, “Advances in metaphotonics empowered single photon emission,” *Advanced Optical Materials*, vol. 11, no. 10, p. 2202759, 2023.
- [45] L. Bremer, S. Rodt, and S. Reitzenstein, “Fiber-coupled quantum light sources based on solid-state quantum emitters,” *Materials for Quantum Technology*, vol. 2, no. 4, p. 042002, 2022.

- [46] T. Kupko, M. von Helversen, L. Rickert, J.-H. Schulze, A. Strittmatter, M. Gschrey, S. Rodt, S. Reitzenstein, and T. Heindel, “Tools for the performance optimization of single-photon quantum key distribution,” *npj Quantum Information*, vol. 6, no. 1, p. 29, 2020.
- [47] C.-Y. Lu and J.-W. Pan, “Quantum-dot single-photon sources for the quantum internet,” *Nature Nanotechnology*, vol. 16, no. 12, pp. 1294–1296, 2021.
- [48] H. Wang, J. Qin, X. Ding, M.-C. Chen, S. Chen, X. You, Y.-M. He, X. Jiang, L. You, Z. Wang, *et al.*, “Boson sampling with 20 input photons and a 60-mode interferometer in a 10^{14} -dimensional hilbert space,” *Physical review letters*, vol. 123, no. 25, p. 250503, 2019.
- [49] H.-S. Zhong, L.-C. Peng, Y. Li, Y. Hu, W. Li, J. Qin, D. Wu, W. Zhang, H. Li, L. Zhang, *et al.*, “Experimental gaussian boson sampling,” *Science Bulletin*, vol. 64, no. 8, pp. 511–515, 2019.