



ΕΘΝΙΚΟ ΜΕΤΣΟΒΙΟ
ΠΟΛΥΤΕΧΝΕΙΟ

ΣΧΟΛΗ ΕΦΑΡΜΟΣΜΕΝΩΝ
ΜΑΘΗΜΑΤΙΚΩΝ ΚΑΙ
ΦΥΣΙΚΩΝ ΕΠΙΣΤΗΜΩΝ

ΣΧΟΛΗ ΜΗΧΑΝΟΛΟΓΩΝ
ΜΗΧΑΝΙΚΩΝ

ΕΚΕΦΕ «ΔΗΜΟΚΡΙΤΟΣ»

ΙΝΣΤΙΤΟΥΤΟ ΝΑΝΟΕΠΙΣΤΗΜΗΣ
ΚΑΙ ΝΑΝΟΤΕΧΝΟΛΟΓΙΑΣ

ΙΝΣΤΙΤΟΥΤΟ ΠΥΡΗΝΙΚΗΣ ΚΑΙ
ΣΩΜΑΤΙΔΙΑΚΗΣ ΦΥΣΙΚΗΣ



**Διατμηματικό Πρόγραμμα Μεταπτυχιακών Σπουδών
«Φυσική και Τεχνολογικές Εφαρμογές»**

**Φασική εξάρτηση οπτικών ιδιοτήτων
τετρα-σταθμικών κβαντικών συστημάτων
υπό την παρουσία μικροδομών χαλκογενιδίων
του βισμούθιου.**

ΜΕΤΑΠΤΥΧΙΑΚΗ ΔΙΠΛΩΜΑΤΙΚΗ ΕΡΓΑΣΙΑ

του ΘΕΟΔΩΡΟΥ ΠΑΠΑΧΡΟΝΗ

Επιβλέπων:

Βασίλειος Γιαννόπαπας

Αθήνα, Φεβρουάριος, 2022

Περίληψη

Στη παρούσα διπλωματική εργασία μελετάμε τις επιδράσεις που εξαρτώνται από τη φάση στις ιδιότητες γραμμικής απορρόφησης και διασποράς ενός κβαντικού συστήματος διπλού τύπου V τεσσάρων επιπέδων κοντά σε μια τοπολογική μικροδομή. Στο υπό μελέτη κβαντικό σύστημα η μία μετάβαση τύπου V επηρεάζεται από την αλληλεπίδραση με τη μικροδομή ενώ η άλλη μετάβαση τύπου V λαμβάνει χώρα στο κενό. Ως τοπολογική μικροδομή θεωρούμε διμερή χαλκογενιδίων του βισμούθιου, και υπολογίζουμε τους σχετικούς ρυθμούς αποδιέγερσης με τη βοήθεια της μεθόδου πεπερασμένων στοιχείων. Το κβαντικό σύστημα αλληλεπιδρά με δύο ορθογώνια κυκλικά πολωμένα πεδία λέιζερ με την ίδια συχνότητα και διαφορετικές φάσεις και πλάτη ηλεκτρικού πεδίου, που συνδυάζουν τη χαμηλότερη κατάσταση με τις ανώτερες καταστάσεις στις μεταβάσεις ελεύθερου χώρου. Χρησιμοποιούμε μια μεθοδολογία πίνακα πυκνότητας για τον υπολογισμό της γραμμικής επιδεκτικότητας και δείχνουμε ότι η παρουσία της τοπολογικής μικροδομής οδηγεί σε ισχυρή τροποποίηση των φασμάτων απορρόφησης και διασποράς για ένα από τα πεδία λέιζερ, παρουσία του άλλου. Επιπλέον, δείχνουμε ότι μπορεί κανείς να χρησιμοποιήσει τη διαφορά φάσης και τα σχετικά πλάτη ηλεκτρικού πεδίου των δύο πεδίων λέιζερ για αποτελεσματικό έλεγχο των οπτικών ιδιοτήτων του συστήματος. Παρουσιάζονται φαινόμενα όπως η πλήρης οπτική διαφάνεια, μηδενική απορρόφηση με μη μηδενική διασπορά και κέρδος χωρίς αναστροφή, καθώς και οι συνθήκες για να συμβούν αυτά τα φαινόμενα.

Abstract

In this master thesis we study the phase-dependent effects on the linear absorption and dispersion properties of a double V-type quantum system near a topological microstructure. In the quantum system under study, one V-type transition is influenced by the interaction with the microstructure, while the other V-type transition takes place in vacuum. As a topological microstructure we consider Bi_2Te_3 , Bi_2Se_3 , and calculate the relative rates of de-excitation with the help of the finite element method. The quantum system interacts with two rectangular circular polarized laser fields with the same frequency and different phases and electric field widths, combining the lowest state with the upper states in the free space transitions. We use a density matrix methodology to calculate linear susceptibility and show that the presence of the topological microstructure leads to a strong modification of the absorption and dispersion spectra for one of the laser fields, in the presence of the other. In addition, we show that one can use the phase difference and relative electric field widths of the two laser fields for effective control of the optical properties of the system. Phenomena such as full optical transparency, zero absorption with non-zero dispersion and gain without inversion, as well as the conditions for these phenomena, occur.

Ευχαριστίες

Για αρχή θα ήθελα να ευχαριστήσω τον επιβλέποντα καθηγητή μου Βασίλη Γιαννόπαπα, τόσο για την ευκαιρία που μου έδωσε να ολοκληρώσω το πρόγραμμα μεταπτυχιακών σπουδών όσο και για την έμπρακτη στήριξή του στην προετοιμασία της εργασίας αυτής. Επίσης θα ήθελα να ευχαριστήσω τον Κωστή Παρασκευαΐδη για την ουσιαστική βοήθεια που μου έδωσε καθ' όλη τη διάρκεια φοίτησής μου στο ΔΠΜΣ «Φυσική και Τεχνολογικές Εφαρμογές». Τέλος, θα ήθελα να ευχαριστήσω τα κοντινά μου πρόσωπα και φίλους, τον Παντελή και τη Νεφέλη χωρίς την ψυχολογική υποστήριξη των οποίων, θα μου ήταν αδύνατο να ολοκληρώσω την εργασία αυτή.

Περιεχόμενα

Περίληψη	i
Abstract	ii
Ευχαριστίες	iii
1. Κβαντική Νανοφωτονική	1
1.1 Περιγραφή και κβάντωση επιφανειακών πλασμονίων	2
1.2 Κβαντικές Ιδιότητες επιφανειακών πλασμονίων	4
Επιβίωση του εναγκαλισμού.	4
Κβαντική επίδραση μεγέθους.....	6
Φαινόμενο της Κβαντικής Σήραγγας.....	6
1.3 Απομονωμένοι εκπομποί συζευγμένοι με SPP	7
Ασθενής και Ισχυρή Σύζευξη	8
2. Χαλκογενίδια του Βισμούθιου	10
2.1 Τοπολογικοί Μονωτές.....	10
2.2 Bi₂Te₃, Bi₂Se₃.....	11
3. Θεωρία Κβαντικού Εκπομπού και εξάρτηση από τη φάση.....	14
3.1 Εισαγωγή.....	14
3.2 Θεωρητικό μοντέλο και υπολογισμός της γραμμικής επιδεκτικότητας.....	16
4. Αποτελέσματα – Συζήτηση	22
4.1 2D πλασμονική νανοδομή εφαπτόμενων νανοσφαιριδίων πυριτίου με μεταλλική επικάλυψη	22
4.2 Διμερές Bi₂Te₃	26
4.3 Διμερές Bi₂Se₃	33
5. Συμπεράσματα	41
Βιβλιογραφία.....	42

1. Κβαντική Νανοφωτονική

Εάν η φωτονική ορίζεται ως η μελέτη, ο σχεδιασμός και η εφαρμογή αλληλεπιδράσεων φωτός-ύλης για τη δημιουργία οπτικών συσκευών όπως πηγές φωτός, διακόπτες και ενισχυτές, τότε η νανοφωτονική περιλαμβάνει τις ίδιες έννοιες με τη φωτονική, αλλά για συσκευές στη νανοκλίμακα. Δεδομένου ότι είναι ο χωρικός περιορισμός των κυμάτων φωτός σε σύνθετα μέσα και κύματα ηλεκτρονίων, σε διάφορα νανοδομημένα στερεά που καθορίζουν πολλαπλά φυσικά φαινόμενα, η νανοφωτονική, είναι δυνατόν να χαρακτηριστεί ως η επιστήμη και η τεχνολογία των περιορισμένων κυμάτων φωτός και των κυμάτων ηλεκτρονίων .

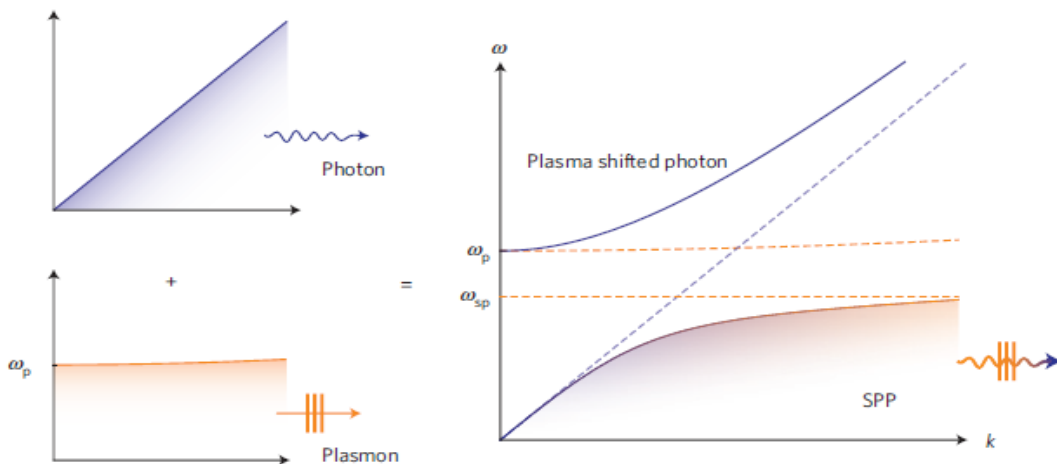
Η κβαντική νανοφωτονική έχει γίνει ένα νέο ερευνητικό πεδίο όπου η κβαντική οπτική συνδυάζεται με τη νανοφωτονική προκειμένου να ενισχυθεί και να ελεγχθεί η αλληλεπίδραση μεταξύ ισχυρά περιορισμένων φωτοαντιισταθμιστών και κβαντικών εκπομπών. Με πιο απλά λόγια η κβαντική νανοφωτονική, όντας ένα από τα ταχέως αναπτυσσόμενα πεδία, διερευνά πώς το φως αλληλεπιδρά με άτομα, μόρια και τεχνητές δομές. Επικεντρώνεται στην παραγωγή, την εκπομπή, το χειρισμό και την ανίχνευση του φωτός χρησιμοποιώντας την ευέλικτη μηχανική και τον συνεκτικό έλεγχο των κβαντικών συστημάτων. Επιτρέπει την εξερεύνηση θεμελιωδών πτυχών της κβαντικής φυσικής, ενώ ωθεί τα υπάρχοντα κβαντικά συστήματα σε νέα μονοπάτια. Αυτή η πρόοδος παρέχει μια πολλά υποσχόμενη πορεία προς την επεξεργασία κβαντικών πληροφοριών σε μια πλατφόρμα στερεάς κατάστασης. Όλα τα παραπάνω έγιναν δυνατά λόγω της εξερεύνησης μη κλασικών χαρακτηριστικών ειδικά προετοιμασμένων συστημάτων. Στις περισσότερες περιπτώσεις αυτά τα συστήματα είναι αρκετά εύθραυστα και απαιτούν ορισμένες συνθήκες για να παρουσιάσουν και να διατηρήσουν κβαντικές ιδιότητες, όπως κρυογονικές θερμοκρασίες. Η νανοφωτονική προσφέρει μια ελκυστική πλατφόρμα για την πραγματοποίηση διαφόρων κβαντικών χαρακτηριστικών με το φως.

Ένας νέος τομέας έρευνας στη νανοφωτονική είναι ο συνδυασμός νανοπλασματικής με κβαντική οπτική, δηλαδή η κβαντική πλασματική. Η κβαντική πλασματική είναι ένα ταχέως αναπτυσσόμενο πεδίο έρευνας που περιλαμβάνει τη μελέτη των κβαντικών ιδιοτήτων του φωτός και την αλληλεπίδρασή του με την ύλη σε νανοκλίμακα. Εδώ, τα επιφανειακά πλασμόνια — ηλεκτρομαγνητικές διεγέρσεις που συνδέονται με κύματα πυκνότητας φορτίου ηλεκτρονίων σε μεταλλικές-διηλεκτρικές διεπαφές ή εντοπίζονται σε μεταλλικές νανοδομές — επιτρέπουν τον περιορισμό του φωτός σε κλίμακες πολύ χαμηλότερες από αυτές των συμβατικών οπτικών.

1.1 Περιγραφή και κβάντωση επιφανειακών πλασμονίων

Μία από τις πιο θεμελιώδεις πτυχές της κβαντικής πλασμονικής είναι η περιγραφή των επιφανειακών πλασμονίων χρησιμοποιώντας την κβαντική μηχανική. Αυτό είναι που το ξεχωρίζει από όλους τους άλλους τομείς της σύγχρονης πλασμονικής.

Οι Bohm και Pines, περί το 1950, παρέχουν με την εργασία τους το πρώτο μοντέλο για την κβάντωση των κυμάτων πλάσματος σε μέταλλα [1]. Τα ηλεκτρόνια στη ζώνη αγωγιμότητας θεωρήθηκαν ελεύθερα ηλεκτρόνια σε ένα αέριο ηλεκτρονίων και οι συσχετίσεις μεγάλης εμβέλειας στις θέσεις τους αντιμετωπίστηκαν με όρους συλλογικών ταλαντώσεων του συστήματος στο σύνολό του. Η κβαντική μορφή αυτών των συλλογικών ταλαντωτών - τα πλασμόνια - είναι μποζόνια, με κυματική και σωματιδιακή συμπεριφορά. Με δεδομένο λοιπόν ότι το πλασμόνιο που διεγείρεται σε μια επιφάνεια είναι μια εγκάρσια διέγερση, καταλαβαίνουμε ότι το τελευταίο μπορεί (σε κατάλληλες διατάξεις) να συζευχθεί με το φως. Το νέο διαδιδόμενο υβρίδιο, δηλαδή η συλλογική διέγερση ηλεκτρονίων χαμηλότερης ενέργειας που εμφανίζεται σε μεταλλικές επιφάνειες ονομάζεται επιφανειακό πλασμόνιο πολαριτόνιο [2],[3]. Το πολαριτόνιο δηλαδή η κοινή κατάσταση φωτός και ύλης εισήχθη από τον Hopfield [4], ο οποίος πρότεινε ένα κβαντικό μοντέλο για το πεδίο πόλωσης που περιγράφει την απόκριση της ύλης στο φως. Ανάλογα με τον τύπο της ύλης, ο Χόπφιλντ ονόμασε το πεδίο «φωνόνιο –πολαριτόνιο», «πλασμόνιο-πολαριτόνιο» και ούτω καθεξής, με τα κβάντα ως μποζόνια. Η ιδέα ενός επιφανειακού κύματος πλάσματος (SPW) διατυπώθηκε από τον Ritchie [5] μέχρι που τελικά, οι Elson και Ritchie [6], βασιζόμενοι στην προσέγγιση του Hopfield ανέπτυξαν τη πρώτη κβαντική περιγραφή των SPWs ως «SPPs», με τη σύζευξη φωτός και ύλης να περιγράφεται στην *Εικόνα 1* [7].



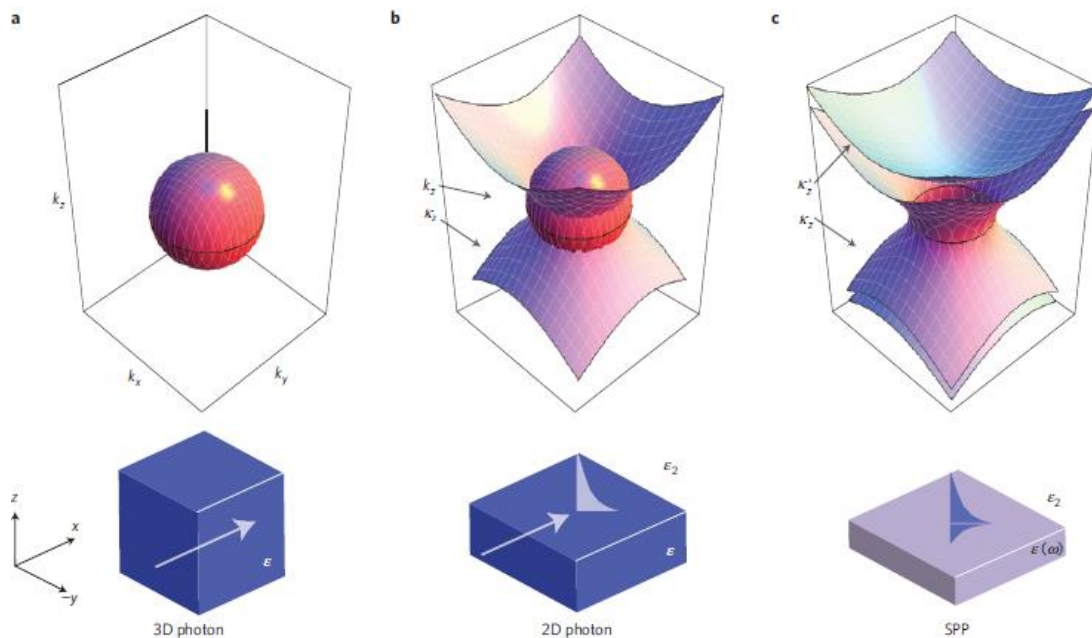
Εικόνα 1 [7]: Η σύζευξη ενός φωτονίου και ενός πλασμονίου στη διεπαφή ενός υλικού με αρνητική διηλεκτρική συνάρτηση (για παράδειγμα, ένα μέταλλο) και ένα με θετική διηλεκτρική συνάρτηση (για παράδειγμα, αέρας) οδηγεί σε διάσπαση των καμπυλών διασποράς ($\omega-k$) (συμπαιγείς γραμμές) για τις διεγέρσεις, οι οποίες σχηματίζουν ένα φωτόνιο μετατοπισμένο στο πλάσμα και ένα SPP ως κατάσταση σύζευξης φωτός (φωτόνιο) και ύλης (επιφανειακό πλασμόνιο).

Παρά τα θετικά της στοιχεία, η προσέγγιση του Horfield υστερούσε καθώς δεν συνυπολόγιζε την απώλεια, η οποία προκαλείται από τη σκέδαση ηλεκτρονίων με ιόντα υποβάθρου και φωνόνια στη ζώνη αγωγιμότητας [8] και σε υψηλές συχνότητες από διασταυρούμενες μεταβάσεις [9]. Κατά συνέπεια προτάθηκε μια «μικροσκοπική» μέθοδος κβάντωσης από τους Huttner και Barnett [10], ενώ πιο πρόσφατα, αναπτύχθηκε και μια «μακροσκοπική» προσέγγιση με τη χρήση των συναρτήσεων Green [11]

Τέλος έχουν περιγραφεί κβαντικά και εντοπισμένες ταλαντώσεις επιφανειακού πλάσματος σε νανοσωματίδια [12],[13],[14], τα κβάντα των οποίων ονομάζονται εντοπισμένα επιφανειακά πλασμόνια (LSPs).

Τα SPPs έχουν μια σημαντική ικανότητα, καθώς μπορούν να περιορίζουν και να καθοδηγούν το συζευγμένο πεδίο φωτός τους σε περιοχές πολύ κάτω από το όριο περίθλασης [1].

Το πεδίο των SPP μπορεί να περιοστεί σημαντικά σε διαστάσεις κάτω από το μήκος κύματος. Νεότερες μελέτες όμως [15],[16] φανέρωσαν την υποκείμενη διαφορά μεταξύ αυτού του περιορισμού, περιορισμό μπορούν επίσης να επιτύχουν τα τυποποιημένα οπτικά υλικά (όταν έχουν μεγάλη διηλεκτρική σταθερά), και του περιορισμού κάτω από το όριο διάθλασης. Ο δεύτερος περιορισμός είναι ένα μοναδικό χαρακτηριστικό του φωτός που καθοδηγείται από SPPs και εντοπίζεται από LSP χρησιμοποιώντας υλικά με αρνητική διηλεκτρική σταθερά, όπως μέταλλα, υπεραγωγούς και γραφένιο.



Εικόνα 2[7] : Περιορισμός SPP πεδίου σε διαστάσεις κάτω από το μήκος κύματος και σε διαστάσεις κάτω από το όριο περίθλασης [7] α) Η k χωρική επιφάνεια για ένα φωτόνιο σε ένα τρισδιάστατο υλικό Μπορεί κανείς να δει ότι η μέγιστη εξάπλωση για οποιονδήποτε αριθμό κύματος είναι $2k$, οδηγώντας στο όριο περίθλασης. β) Η k χωρική επιφάνεια για ένα δυσδιάστατο φωτόνιο όπου έχει λάβει χώρα πλήρης εσωτερική ανάκλαση. Εδώ, ο κυματριθμός $k=k_x^2+k_y^2$, πρέπει να ταιριάζει σε όλη τη διεπαφή, έτσι ώστε η μέγιστη εξάπλωση των μεμονωμένων κυματριθμών k_x και k_y στο ανώτερο υλικό να είναι και πάλι περιορισμένη περίθλαση. γ) Η k χωρική επιφάνεια

για ένα SPP σχετιζόμενο πεδίο όπου ο συνολικός κυματαριθμός κύματος δεν είναι πλέον περιορισμένος στο όριο περίθλασης. Η αξία του εξαρτάται τώρα από τη γεωμετρία του κυματοδηγού και το υλικό που χρησιμοποιείται.

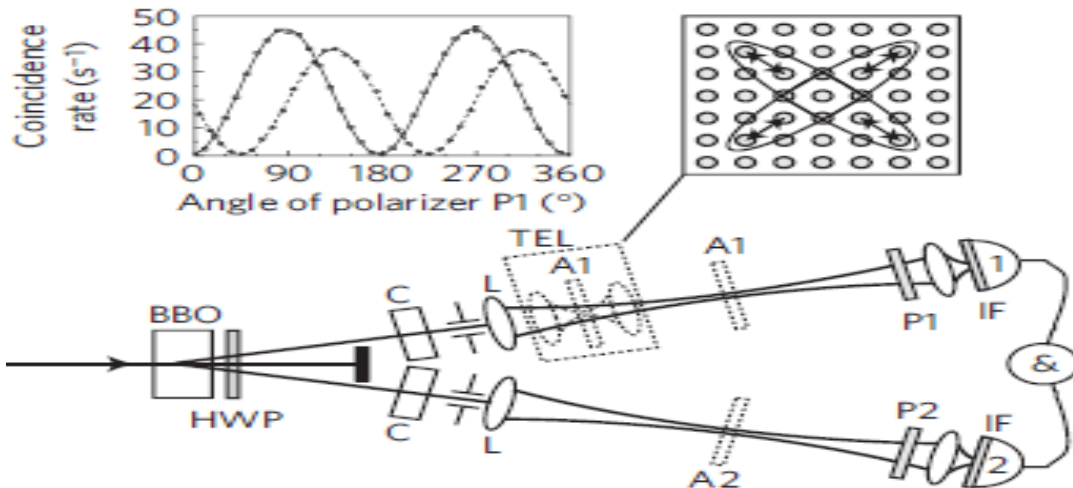
Περιορίζοντας το φως χρησιμοποιώντας SPPs ή LSP, κάποιος είναι σε θέση να αλλάξει σημαντικά τη φωτονική πυκνότητα των καταστάσεων. Έτσι, η δυναμική αλληλεπίδραση φωτός και ύλης μπορεί να τροποποιηθεί και να ενισχυθεί σημαντικά [17]. Αρκετές ομάδες ξεκίνησαν έρευνες για την εκπομπή φωτός από απομονωμένα συστήματα υλικών τοποθετημένα κοντά σε μέταλλα. Πιο συγκεκριμένα, ο Hecker και οι συνεργάτες του παρατήρησαν μια 3-πλάσια βελτίωση της φωτεινότητας από ένα μόνο κβαντικό πηγάδι και διαπίστωσαν ότι οφειλόταν στη δημιουργία επιφανειακών πλασματικών κυμάτων [18]. Ο Neogi [19] και άλλοι χρησιμοποίησαν χρονικές μετρήσεις φωτεινότητας για να δείξουν την ενίσχυση της στιγμιαίας εκπομπής μέσω της σύζευξης ενός κβαντικού πηγαδιού σε επιφανειακά κύματα πλάσματος. Η ενίσχυση είναι γνωστή ως φαινόμενο Purcell [20].

1.2 Κβαντικές Ιδιότητες επιφανειακών πλασμονίων

Επιβίωση του εναγκαλισμού.

Ο πρώτος που παρατήρησε πειρατικά τις οπτικές ιδιότητες σε μια πλασματική δομή ήταν ο Altewischer [21]. Ο Altewischer απέδειξε πως ο κβαντικός εναγκαλισμός του ενός ή και των δύο πολωμένων φωτονίων ενός ζεύγους επιβιώνει, όταν μετατρέπονται σε SPPs -μέσω ενός μεταλλικού πλέγματος οπών- και στη συνέχεια ξαναγίνονται φωτόνια [7]. Αν και πολλά φωτόνια χάθηκαν λόγω απωλειών στο μέταλλο, τα φωτόνια που επέζησαν και έφτασαν στους ανιχνευτές βρέθηκαν να είναι πολύ εναγκαλισμένα. Μάλιστα ο εναγκαλισμός μπορεί να παρατηρηθεί και σε άλλους βαθμούς ελευθερίας. Συγκεκριμένα ο Fasel και άλλοι [22] έδειξαν την ύπαρξη εναγκαλισμού με διατήρηση ενέργειας και χρόνου. Παρατήρησαν ένα SPP σε υπέρθεση το οποίο υπήρχε σε δυο χρονικές περιόδους οι οποίες χωριζόταν από ένα μήκος χρόνου μεγαλύτερο από τον χρόνο ζωής του SPP. Η μελέτη γύρω από τον κβαντικό εναγκαλισμό επεκτάθηκε από τον Ren [23], καθώς απέδειξε ότι ο εναγκαλισμός της τροχιακής στροφορμής θα μπορούσε επίσης να επιβιώσει από τη μετατροπή προς και από SPPs.

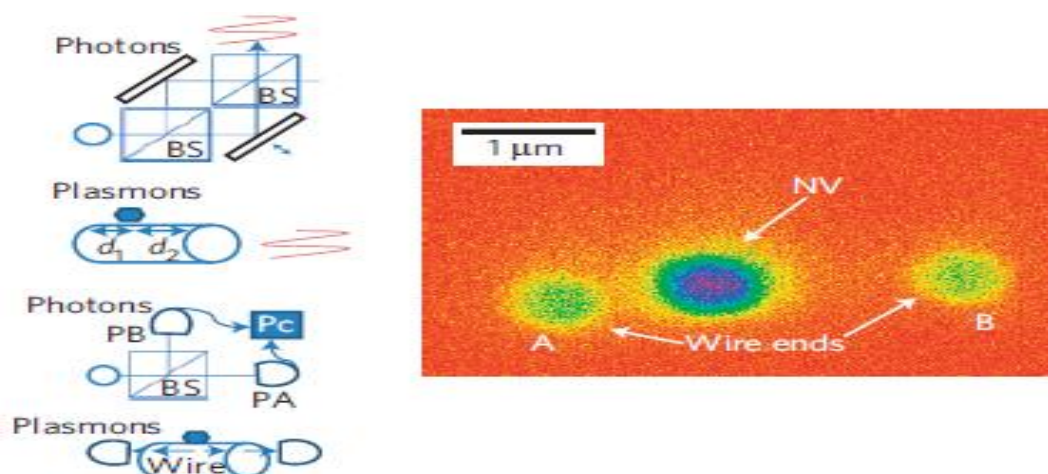
Αυτά τα αρχικά πειράματα και πληθώρα άλλων [24],[25] επιβεβαίωσαν ότι ο εναγκαλισμός και η κβαντική πληροφορία θα μπορούσαν να κωδικοποιηθούν στη συλλογική κίνηση ενός ηλεκτρονικού συστήματος πολλών σωματιδίων και ότι η μακροσκοπική φύση ενός SPP (που περιλαμβάνει $\sim 10^6$ ηλεκτρόνια) δεν καταρρίπτει την κβαντική συμπεριφορά. Η διατύπωση αυτού του συμπεράσματος είχε τρομερή σημασία, καθώς αναμενόταν ότι οι συγκρούσεις σε αυτή τη μαζική συλλογή φορτίων αναπόφευκτα θα οδηγούσαν σε αποσύνδεση και απώλεια κβαντικών πληροφοριών.



Εικόνα 3[7]: Η υποβοηθούμενη από το πλασμόνιο μετάδοση των μπλεγμένων φωτονίων με τη βοήθεια πόλωσης μέσω ενός ενός μεταλλικού πλέγματος οπών . BBO: Μη γραμμικός κρύσταλλος βορικού βαρίου για την παραγωγή φωτονίων μέσω παραμετρικής προς τα κάτω μετατροπής, C: αντισταθμιστικός κρύσταλλος για τη ρύθμιση της φάσης μεταξύ των συστατικών της μπλεγμένης κατάστασης, HWP: πλάκα μισού κύματος, L: φακός, TEL: συνεστιακό τηλεσκόπιο, A1 και A2: μεταλλικό πλέγμα, P1 και P2: πολωτής, IF: φίλτρο παρεμβολής, P1 και P2: Ανιχνευτές μονών φωτονίων [7]

Ωστόσο, παρ' ότι οι κβαντικές ιδιότητες του φωτός φάνηκε να επιβιώνουν της μετάβασης φωτόνιο – SPS – φωτόνιο σε αρκετά μεγάλο βαθμό, σε πληθώρα πειράματων [21],[22],[26] η ορατότητα των περιθωρίων παρεμβολής βρέθηκε να μειώνεται λόγω της ωμικής απώλειας και της επιφανειακής σκέδασης [7].

Είναι γνωστό, ότι μια ενιαία κβαντική διέγερση παρουσιάζει τόσο κυματική όσο και σωματιδιακή συμπεριφορά. Η διττή φύση των SPPs, δηλαδή η δυνατότητα περιγραφής τους και ως κύμα αλλά και ως σωματίδια, αναδείχθηκε από τον Koleson [27] όπως περιγράφεται στην Εικόνα 4 [7].



Εικόνα 4[7] : Διαδικότητα κυματικών σωματιδίων των SPPs που διεγείρονται από ένα κέντρο NV σε διαμάντι τοποθετημένο σε κοντινή απόσταση από ένα νανοσύρμα [27]. Ένα μόνο SPP παρεμβαίνει στον εαυτό του (κυματοειδές, πάνω) και δείχνει κυματοειδή συμπεριφορά χρησιμοποιώντας ένα beamsplitter (σωματιδιακό, κάτω μέρος). NV: κέντρο κενού - αζώτου, BS: beamsplitter, d_1 και d_2 είναι η απόσταση μεταξύ του κέντρου NV και του στενού και μακρινού άκρου του νανοσύρματος, αντίστοιχα, PA και PB είναι φωτοδιόδοι, Pc είναι ένας συσχετιστής φωτονίων, A και B είναι τα άκρα σύρματος.

Κβαντική επίδραση μεγέθους

Το μοντέλο Drude είναι ένα απλό μακροσκοπικό μοντέλο το οποίο μέσω της πίεσης των ηλεκτρονίων εισάγει κβαντικά (απαγορευτική αρχή Pauli) και δυναμικά (δύναμη Coulomb) αποτελέσματα και ταυτόχρονα είναι πολύ πιο έγκυρο από τα καθαρά μακροσκοπικά μοντέλα. Αφενός έχει το πλεονέκτημα ότι μπορεί εύκολα να χρησιμοποιηθεί με αριθμητικές μεθόδους σε πολλά σχήματα και διατάξεις [28]. Αφετέρου αντιμετωπίζει το μειονέκτημα της παράλειψης κβαντικών ιδιοτήτων όπως το φαινόμενο σήραγγας και την διέγερση ηλεκτρονίων και οπών.

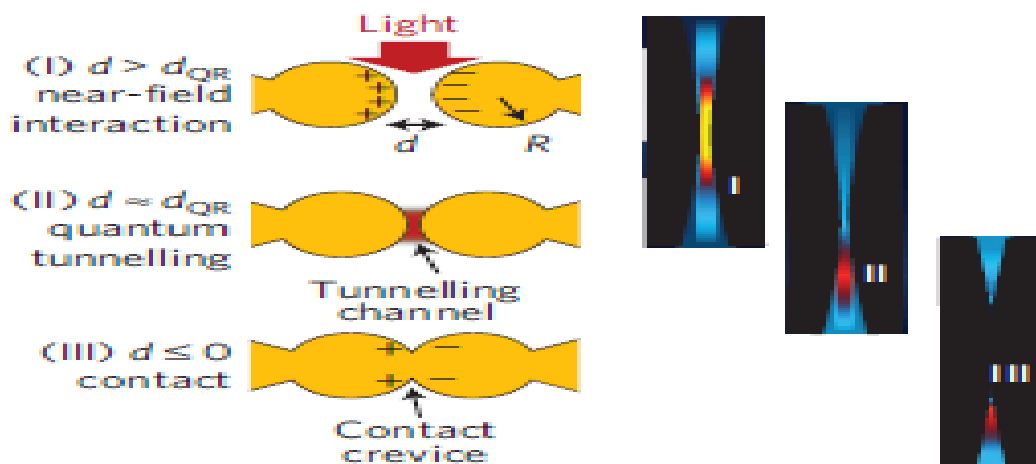
Ανάλογα λοιπόν με το μέγεθος μιας μεταλλικής νανοδομής, οι μικροσκοπικές κβαντικές επιδράσεις μπορεί να είναι σημαντικές στην περιγραφή της ηλεκτροδυναμικής. Η συνεχής ηλεκτρονική ζώνη αγωγιμότητας, που ισχύει σε μακροσκοπικές κλίμακες, διασπάται σε διακριτές καταστάσεις όταν οι διαστάσεις είναι αρκετά μικρές, καθιστώντας το μοντέλο Drude για τη διηλεκτρική λειτουργία μη έγκυρο [29],[30],[31],[32].

Το φαινόμενο κβαντικής επίδρασης του μεγέθους, το οποίο εκδηλώνεται ως μετατόπιση και διεύρυνση του συντονισμού του πλασμονίου, εκτός από την εμφάνιση μιας λεπτής δομής, που αντιστοιχεί σε μεταβάσεις μεταξύ των διακριτών ενεργειακών επιπέδων [29], [33], [34], [35]. Ο Scholl υποστήριξε πως όταν η διάμετρος ενός νανομορίου προσεγγίζει ένα κρίσιμο μέγεθος, ο συντονισμός του πλασμονίου υφίσταται μια μπλε μετατόπιση με διεύρυνση της γραμμής, η οποία είναι δραστικά διαφορετική από τις προβλέψεις του κλασικού ηλεκτρομαγνητισμού [36],[37]. Έτσι πλέον καταλληλότερο μοντέλο για τη περιγραφή ενός συστήματος ηλεκτρονίων πολλών σωμάτων, συναρτησιακή θεωρία αριθμητικής πυκνότητας (DFT), με βάση την οποία γίνεται χρήση κβαντικών διηλεκτρικών συναρτήσεων για την πρόβλεψη πειραματικών παρατηρήσεων. Το DFT ερμηνεύει τη διαρροή ηλεκτρονίων έξω από ένα νανοσωματίδιο και τη σταδιακή αλλαγή των διηλεκτρικών ιδιοτήτων στην επιφάνεια του. Χρησιμοποιώντας DFT, οι Prodan et al. έχουν δείξει ότι η διαρροή ηλεκτρονίων σε νανοκύβια μπορεί να εισαγάγει νέους τρόπους ταλάντωσης και να διευρύνει τους συντονισμούς του πλασμονίου [38]. Οι Zuloaga et al. έχουν επίσης χρησιμοποιήσει το DFT για να διερευνήσουν την κβαντική πλασμονική συμπεριφορά στα νανοραβδία 66 ενώ οι Townsend και Bryant έχουν διαπιστώσει ότι σε μικρά νανοσφαιρίδια μπορεί να υπάρχουν δύο τύποι συλλογικών ταλαντώσεων, τα κβαντικά πλασμόνια πυρήνα στο κέντρο και τα κλασικά επιφανειακά πλασμόνια [39]. Έχουν επίσης μελετηθεί επιδράσεις κβαντικού μεγέθους σε λεπτά υμένα [40],[41], καθώς και στο γραφένιο [42]. Είναι λοιπόν πέραν πάσης αμφιβολίας ότι το φαινόμενο κβαντικής επίδρασης του μεγέθους πρέπει να λαμβάνεται υπ' όψιν όταν γίνεται σχεδιασμός εξαιρετικά συμπαγών νανοφωτονικών συσκευών με βάση την πλασμονική.

Φαινόμενο της Κβαντικής Σήραγγας

Όταν οι μεταλλικές νανοδομές τοποθετούνται κοντά η μία στην άλλη μπορεί να συμβεί το φαινόμενο της κβαντικής σήραγγας. Οι Zuloaga και άλλοι έχουν δείξει ότι τα φαινόμενα σήραγγας ηλεκτρονίων μπορούν να διαδραματίσουν σημαντικό ρόλο στους οπτικούς συντονισμούς μεταξύ δύο νανοσωματιδίων με αποστάσεις διαχωρισμού $d < 1\text{nm}$ [43]. Επιπλέον, για αποστάσεις $d < 0,5\text{nm}$ το διμερές εισέρχεται σε ένα αγωγίμο καθεστώς, όπου εμφανίζεται ένα πλασμόνιο μεταφοράς φορτίου

που περιλαμβάνει ηλεκτρόνια που ρέουν εμπρός και πίσω μεταξύ των σωματιδίων.. Οι Savage et al. ανακάλυψαν πειραματικά το κβαντικό όριο της πλασμονικής σήραγγας σε υπονανομετρικές πλασμονικές κοιλότητες που σχηματίζονται από δύο νανοδομές [44] *Εικόνα 5 [7]*



Εικόνα 5[7] : Η εξέλιξη των πλασμονικών τρόπων καθώς η απόσταση μεταξύ των σωματιδίων ποικίλλει από το κλασικό όριο έως το κβαντικό όριο [40]. Η έναρξη της κβαντικής σήραγγας καθορίζει ένα κβαντικό όριο πλασμονικού περιορισμού. Εδώ, το d_{QR} υποδηλώνει την κρίσιμη απόσταση κάτω από την οποία οι αλληλεπιδράσεις πλασμονίου εισέρχονται στο κβαντικό όριο και το R είναι η ακτίνα του νανοσωματιδίου.

Διαπίστωσαν ότι καθώς ο διαχωρισμός της νανοδομής μειώνεται κάτω από ένα κρίσιμο μέγεθος, οι αλληλεπιδράσεις πλασμονίου εισέρχονται στο κβαντικό καθεστώς, που εκδηλώνεται με μια μπλε μετατόπιση των συντονισμών, που αποδίδεται στον έλεγχο των εντοπισμένων επιφανειακών φορτίων με κβαντική σήραγγα και μια επακόλουθη μείωση της πλασμονικής σύζευξης [7]. Επιπλέον έχουν διερευνηθεί και μη γραμμικές επιδράσεις κβαντικής σήραγγας [45]. Πιο πρόσφατα οι Wu et al [46]. εξέτασαν τη σήραγγα Fowler-Nordheim, η οποία συμβαίνει παρουσία εξωτερικού υψηλού ηλεκτρικού πεδίου. Εδώ, τα ηλεκτρόνια από τη ζώνη αγωγιμότητας ενός νανοσωματιδίου περνούν με φαινόμενο σύραγγας στο κενό μεταξύ των νανοσωματιδίων και στη συνέχεια στο. Η αντοχή και ο ρυθμός απόσβεσης των πλασμονικών ταλαντώσεων μπορούν να ελεγχθούν ρυθμίζοντας την ένταση του προσπίπτοντος φωτός. Έτσι, η μεταφορά φορτίου μπορεί να διαμορφωθεί από μια εξωτερική πηγή, η οποία μπορεί να είναι χρήσιμη για την ανάπτυξη νέων κβαντικών συσκευών όπως διακόπτες.

1.3 Απομονωμένοι εκπομποί συζευγμένοι με SPP

Η παρούσα ενότητα θα επικεντρωθεί στις κβαντικές συμπεριφορές πλασμονικών νανοδομών που συνδέονται με κβαντικούς εκπομπούς, των οποίων τα οπτικά πεδία παρουσιάζουν κβαντικά χαρακτηριστικά. Σε αυτή την περίπτωση, εμφανίζονται αλληλεπιδράσεις φωτός-ύλης οι οποίες μάλιστα χωρίζονται σε ασθενή και ισχυρή

σύζευξη. Αυτή η σύζευξη μπορεί να περιγραφεί από μια κλασική εικόνα σύζευξης μεταξύ δύο ταλαντωτών, που αντιστοιχούν στο πλασμόνιο και στον κβαντικό πομπό αντίστοιχα [47]. Αν η ισχύς σύζευξης, η οποία χαρακτηρίζεται από την συχνότητα Ω_R , υπερβαίνει τους ρυθμούς απόσβεσης και των δύο αυτών ταλαντωτών, μπορεί να επιτευχθεί η ισχυρή σύζευξη [48]. Σε αυτή τη περίπτωση, τα φωτόνια μπορούν να απορροφηθούν εκ νέου από τον εκπομπό, γεγονός που οδηγεί σε ανταλλαγή ενέργειας μεταξύ του κβαντικού εκπομπού και της πλασμονικής νανοδομής. Αντίθετα από την ισχυρή σύζευξη, εάν η αποδιέγερση οποιουδήποτε ταλαντωτή είναι μεγαλύτερη από την Ω_R , η σύζευξη θεωρείται ασθενής και μπορεί να παρατηρηθεί μόνο τροποποιημένος ρυθμός αυθόρμητης εκπομπής, που χαρακτηρίζεται από το φαινόμενο Purcell.

Η μεγάλη διάφορα μεγέθους μεταξύ του φωτός και των εκπομπών διασφαλίζει ότι η αλληλεπίδραση ύλης – φωτός μεταξύ τους είναι αδύναμη. Αυτό είναι ένα πρόβλημα καθώς η ισχυρή σύζευξη μεταξύ μεμονωμένων ηλεκτρονίων και εκπομπών είναι απαραίτητη για την ανάπτυξη μελλοντικής κβαντικής τεχνολογίας [49]. Υπάρχουν διάφορες στρατηγικές για να ξεπεραστεί αυτό το πρόβλημα. Υψηλής ποιότητας κοιλοότητες έχουν χρησιμοποιηθεί για να αυξήσουν τους χρόνους απόκρισης και να ενισχύσουν τη σύζευξη. Όμως η χρήση αυτών των κοιλοτήτων θέτει όρια στο εύρος συχνοτήτων και στο μέγεθος των συσκευών. Μια εναλλακτική στρατηγική είναι να χρησιμοποιήσουμε μια επαφή για να γεφυρώσουμε το χάσμα μεγέθους. Περιορίζοντας το φωτεινό πεδίο σε μικρο όγκο βελτιώνεται η αλληλεπίδραση με τον εκπομπό. Οι πλασμονικές καταστάσεις μπορούν να περιοριστούν σε μεγέθη κάτω από το όριο περίθλασης [50].

Στη συνέχεια, θα εξετάσουμε την πρόσφατη πρόοδο των αλληλεπιδράσεων φωτός-ύλης μεταξύ πλασμονικών νανοστοιχιών και κβαντικών εκπομπών από τις δύο πτυχές της ασθενούς και ισχυρής σύζευξης

Ασθενής και Ισχυρή Σύζευξη

Οι αλληλεπιδράσεις ύλης – φωτός μπορούν να χωριστούν σε δυο κατηγορίες, στις ασθενείς και τις ισχυρές. Η ασθενής σύζευξη έχει σχέση με την ενίσχυση Purcell [20] της αυθόρμητης εκπομπής. Το 1946, ο Purcell ανακάλυψε ότι η αυθόρμητη εκπομπή δεν σχετίζεται μόνο με τον ίδιο τον εκπομπό, αλλά εξαρτάται επίσης από το ηλεκτρομαγνητικό περιβάλλον όπου βρίσκεται ο πομπός.

Με άλλα λόγια αυτό το φαινόμενο είναι δυνατό να συμβεί όταν ο εκπομπός βρεθεί κοντά σε μια μεταλλική επιφάνεια ή νανοκατασκευή [51],[52],[53],[46] αλληλεπιδρώντας με περιορισμένες πλασμονικές καταστάσεις [54] ενισχύοντας έντονα την φωτεινότητα του πομπού.

Συγκεκριμένα, απλές πλασμονικές νανοδομές με ακραίο περιορισμό του φωτός και μεγάλες βελτιώσεις πεδίου έχουν ήδη αποδείξει την ικανότητα να ενισχύουν έντονα τόσο τη διέγερση όσο και την αυθόρμητη εκπομπή του εκπομπού [55],[56],[57]. Οι πρόσφατες εξελίξεις στις νανοκατασκευές επέτρεψαν περαιτέρω πολλές νέες και

προσεκτικά σχεδιασμένες πλασμαονικές νανοδομές να συμμετάσχουν στη σύζευξη με κβαντικούς εκπομπούς, συμπεριλαμβανομένων των πλασμαονικών μεταεπιφανειών και των πλασμαονικών δομών νανοσωλήνων.

Αυτή η ενίσχυση προκαλείται από δυο ταυτόχρονες διαδικασίες. Πρώτα, το έντονο πλασμαονικό πεδίο αυξάνει τον ρυθμό διέγερσης του πομπού. Δεύτερον, ο περιορισμός κάτω από το μήκος κύματος του φωτεινού πεδίου ενισχύει το ρυθμό αποδιέγερσης του εκπομπού στο πλασμαονικό επίπεδο μέσω του φαινομένου Purcell [20]. Η φωτεινή ενίσχυση γίνεται πιο έντονη από την διέγερση επιφανειακών κυμάτων στην μεταλλική επιφάνεια [54]. Αυτή η διαδικασία συμβαίνει κοντά στην επιφάνεια και έτσι οδηγεί στην ιδανική απόσταση για να συζεύξουμε τον εκπομπό με το πλασμαονικό επίπεδο. Οι παράγοντες υψηλής ποιότητας, Q , που σχετίζονται με τις παραδοσιακές κοιλότητες περιορίζουν την ταχύτητα με την οποία τα φωτόνια εκπέμπονται εντός της κοιλότητας. Τα πλασμόνια δεν έχουν αυτό το πρόβλημα, όποτε μπορούν να αποτελούν πηγές μεμονωμένων φωτονίων σε ένα τσιπ σε ιδανικές συχνότητες με υψηλή ταχύτητα λειτουργίας. Αυτή η πλασμαονικά επαγόμενη ενίσχυση Purcell μπορεί να χρησιμοποιηθεί για να ενθαρρύνει την κβαντική αλληλεπίδραση ανάμεσα στις μεταβάσεις ενός εκπομπού πολλών επιπέδων.

Η μελέτη των αδύναμων αλληλεπιδράσεων σύζευξης οδηγεί σε πολλά μεγάλα επιτεύγματα για την ενίσχυση του παράγοντα Purcell. Το δεύτερο όμως σημαντικό στοιχείο που πρέπει να ασχοληθούμε είναι η ισχυρή αλληλεπίδραση. Η διερεύνηση της ισχυρής σύζευξης ανοίγει τις δυνατότητες παρατήρησης άλλων βαθιών κβαντικών επιδράσεων, όπως το οπτικό φαινόμενο Stark [58],[59], τα συμπυκνώματα Bose-Einstein [60],[61], η κβαντική εμπλοκή [62],[63] και το κβαντικό δίκτυο [64].

Στην ισχυρή σύζευξη, παρόλο που οι πλασμαονικές καταστάσεις αλληλεπιδρούν ισχυρά με την ύλη λόγω εντόνων ωμικών απωλειών, είναι δύσκολο να εντάξουμε την ισχυρή αλληλεπίδραση στα πλασμαονικά συστήματα. Υπάρχει όμως ένα επίπεδο που η ισχύς της αλληλεπίδρασης λαμβάνει ενδιάμεσες τιμές. Αυτό είναι γνωστό σαν όριο κακής – κοιλότητας (bad-cavity) στην κβαντική ηλεκτροδυναμική κοιλότητων (cavity quantum electrodynamics QCED) και έχει ενδιαφέρουσες φυσικές ιδιότητες, όπως η διαφάνεια [65] που επάγεται από κοιλότητα. Γενικά η ισχυρή αλληλεπίδραση χαρακτηρίζεται από την αντίστροφη ανταλλαγή ενεργείας μεταξύ του φωτεινού πεδίου και του εκπομπού – δηλαδή τις ταλαντώσεις Rabi. Αυτές οι ταλαντώσεις εμφανίζονται σε περιπτώσεις του διαχωρισμού ενέργειας (splitting) φωτός – ύλης, ενώ έχουν γίνει πειραματικές παρατηρήσεις αυτών των διαχωρισμών ενέργειας σε πολλές ομάδες μορίων που προκαλούνται από πλασμαονικές αλληλεπιδράσεις [66],[67],[68],[69].

Επιπλέον θεωρητικές μελέτες έχουν λάβει υπ' όψιν υψηλότερης τάξης διορθώσεις που η σημασία τους δεν μπορεί να αγνοηθεί καθώς ο διαχωρισμός μετάλλου – εκπομπού μειώνεται πέρα από το όριο που η διπολική προσέγγιση είναι δυνατή. Συνεπώς, η QCED [70] αντικαθίσταται από μακροσκοπικές QED τεχνικές που είναι καλύτερα προσαρμοσμένες για πιο πολύπλοκα συστήματα [71].

2. Χαλκογενίδια του Βισμούθιου

2.1 Τοπολογικοί Μονωτές

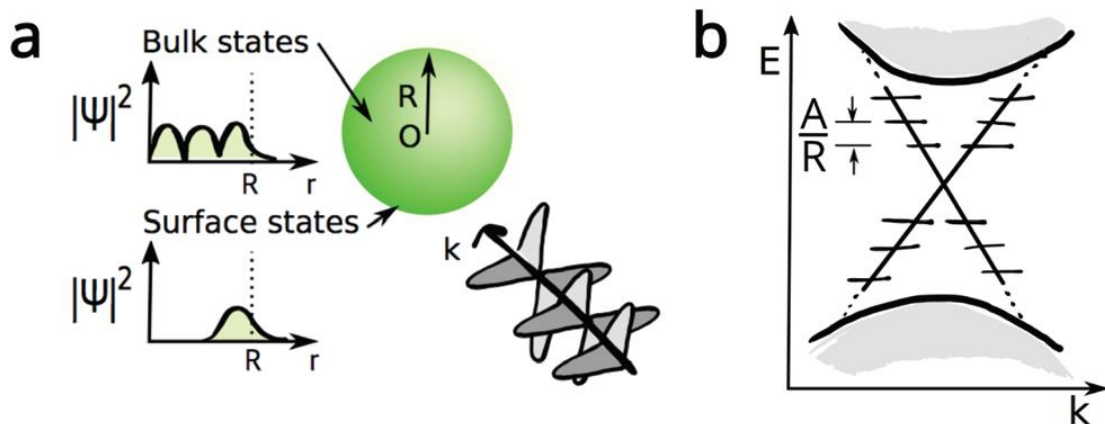
Οι τοπολογικοί μονωτές, αποτελούν μια νέα κατάσταση κβαντικής ύλης που διαφέρει από τα απλά μέταλλα και τους μονωτές, εμφανίζουν ένα ενεργειακό χάσμα στο εσωτερικό του κρυστάλλου, αλλά ταυτόχρονα εμφανίζουν και τοπολογικά προστατευμένες μεταλλικές καταστάσεις πάνω στην επιφάνεια όπου το σπιν παραμένει κάθετο στην ορμή εξαιτίας της ισχυρής αλληλεπίδρασης σπιν-τροχιάς. Τέτοια υλικά έχουν προσελκύσει μεγάλο ενδιαφέρον όσον αφορά τους μηχανισμούς αγωγιμότητας τους [72],[73],[74] ενώ έχουν αποδειχθεί πολύ σημαντικά για νέες εφαρμογές στην ηλεκτρονική [75].

Σε κάθε επιφάνεια, τα ηλεκτρόνια έχουν μόνο έναν βαθμό ελευθερίας περιστροφής. Η φύση των επιφανειακών καταστάσεων που έχουν αναλυθεί με σπιν έχει επιβεβαιωθεί σε πειράματα γωνιακής ανάλυσης φασματοσκοπίας φωτοεκπομπής (ARPES) σε Bi_2Se_3 [76] και Bi_2Te_3 [77]. Αυτές οι επιφανειακές καταστάσεις εμφανίζουν μια γραμμική σχέση διασποράς, που θεωρείται ως κώνος Dirac που γεφυρώνει το ενεργειακό χάσμα στο εσωτερικό τους. Ο κώνος Dirac μπορεί να ανοίξει μόνο σπάζοντας τη συμμετρία αντιστροφής του χρόνου, καθιστώντας αυτές τις καταστάσεις εξαιρετικά ισχυρές. Αυτές οι επιφανειακές καταστάσεις επίσης δεν παρουσιάζουν οπισθοσκέδαση [78].

Σε ένα στερεό, μόνο ένας μικρός αριθμός ατόμων στο υλικό συμβάλλει στη συμπεριφορά της επιφανειακής κατάστασης και έτσι οι τοπολογικές επιδράσεις είναι ασθενείς. Οι δομές νανοκλίμακας, όμως, έχουν ενισχυμένη αναλογία επιφάνειας προς όγκο και ένα μεγαλύτερο ποσοστό ατόμων συμμετέχει στα φαινόμενα επιφάνειας. Αυτό έχει ως αποτέλεσμα μια έντονη τοπολογική συνεισφορά στις ηλεκτρονικές και οπτικές ιδιότητες του συστήματος. Απροσδόκητες κορυφές που παρατηρήθηκαν με τη φασματοσκοπία Raman και έχουν αποδοθεί σε πολλαπλές διαφορετικές προελεύσεις, όπως επιφανειακή οξείδωση, φαινόμενα περιορισμού φωνονίων, ακόμα και μη επαληθευμένα τοπολογικά αποτελέσματα.

Στη περίπτωση νανοσωματιδίων ($5\text{nm} < R < 100\text{nm}$) τοπολογικών μονωτών (topological-insulator nanoparticles TINPs) ο συνεχής κώνος Dirac γίνεται διακριτός λόγω επιδράσεων πεπερασμένου μεγέθους, δίνοντας ένα σύνολο διακριτών ενεργειακών επιπέδων, όπως αυτά σε μια κβαντική τελεία [79], [80]. Η παρουσία διακριτών επιπέδων ενέργειας στα TINPs οδηγεί σε μια νέα σύζευξη φωνονίου-φωτός με τη μεσολάβηση ηλεκτρονίων στην περιοχή Terahertz (THz).

Η αναπαράσταση ενός σφαιρικού TINP καθώς και των εσωτερικών και επιφανειακών καταστάσεων του δίνεται στην Εικόνα 6 [78].



Εικόνα 6[78] : Μικρά TINPs: (α) Αναπαράσταση ενός TINP ακτίνας R ακτινοβολούμενο με φως, που απεικονίζει εσωτερικές και επιφανειακές καταστάσεις. (β) Για μικρά TINPs ($R < 100 \text{ nm}$) Ο κώνος Dirac γίνεται διακριτός με τη θέση των ενεργειακών επιπέδων αντιστρόφως κλιμακούμενη με R .

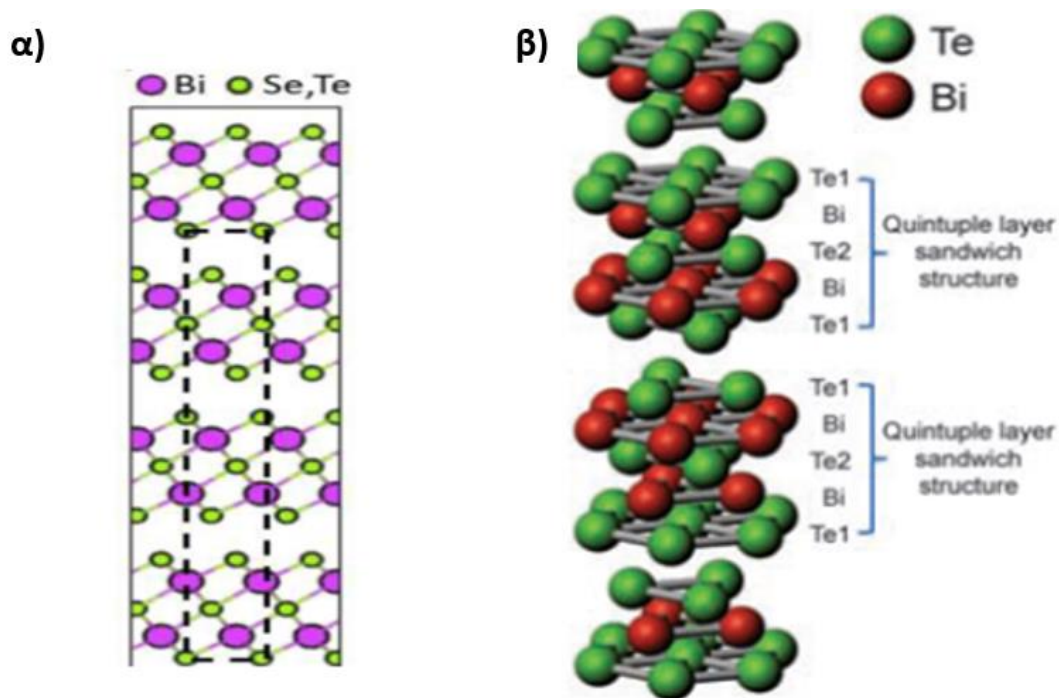
Όπως φαίνεται στην Εικόνα 6b αυτά τα επίπεδα ενέργειας απέχουν εξίσου μεταξύ τους, με τις ενέργειες να αυξάνονται μακριά από το σημείο Γ σε ακέραιες τιμές του A/R . Το A είναι μια εξαρτώμενη από το υλικό ποσότητα, που δίνεται από το στοιχείο πίνακα της ορμής - η οποία υπολογίζεται από τη Χαμιλτονιανή για ένα μοντέλο τεσσάρων ζωνών του εκάστοτε TINP – και υπολογίζεται κατά μέσο όρο σε τρεις άξονες, εφαρμόζοντας θεωρία του συναρτησιακού της πυκνότητας [78].

Όταν λοιπόν ακτινοβολείται φως στο φάσμα των THz, συμβαίνει μια μετάβαση, μεταξύ δύο από αυτών των μετατοπισμένων τοπολογικών επιφανειακών καταστάσεων, εντός του ίδιου εύρους συχνοτήτων με μια ταυτόχρονη διέγερση φωνονίων, με αποτέλεσμα έναν ισχυρό συντονισμό Fano, που αναφέρεται ως λειτουργία επιφανειακού τοπολογικού σωματιδίου (SToP) [79]. Αυτό είναι ένα καθαρά κβαντομηχανικό χαρακτηριστικό του συστήματος και το ασύμμετρο προφίλ αυτού του συντονισμού δημιουργεί ένα σημείο μηδενικής απορρόφησης όταν η ενεργειακή απόσταση των επιφανειακών καταστάσεων ταιριάζει με το προσπίπτον φως. Αυτό σημαίνει ότι η διέγερση ενός μόνο ηλεκτρονίου που καταλαμβάνει μια τοπολογική επιφανειακή κατάσταση μπορεί να θωρακίσει το εσωτερικό του TINP από την απορρόφηση του εισερχόμενου φωτός.

2.2 Bi_2Te_3 , Bi_2Se_3

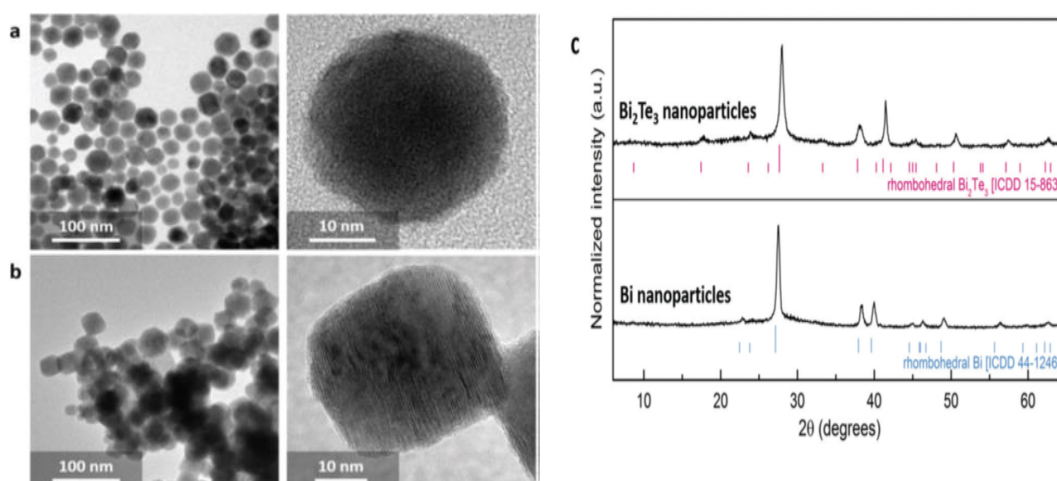
Μία σημαντική κατηγορία διδιάστατων πλέον υλικών για τα οποία έχει αυξηθεί το ερευνητικό ενδιαφέρον τα τελευταία χρόνια, αποτελούν τα χαλκογενίδια του βισμούθιου Bi_2Te_3 , Bi_2Se_3 .

Κρυσταλλώνονται σε μία δομή η οποία αποτελείται από διδιάστατες στρώσεις πέντε ατομικών επιπέδων (βλέπε Εικόνα 7) [81] και έχουν ισχυρούς ομοιοπολικούς δεσμούς μεταξύ του χαλκογόνου και του μετάλλου, αλλά σχετικά αδύναμες αλληλεπιδράσεις μεταξύ των χαλκογόνων ανάμεσα στις γειτονικές στρώσεις.



Εικόνα 7[81] : (α) Πλάγια αναπαράσταση της κρυσταλλικής δομής των Bi_2Se_3 , Bi_2Te_3 και Sb_2Te_3 τα οποία αποτελούνται από διδιάστατα φύλλα 5 ατομικών επιπέδων. Η μαύρη διακεκομμένη γραμμή ορίζει την συμβατική κυψελίδα. (β) Κρυσταλλική και ηλεκτρονική δομή του Bi_2Te_3 .

Μάλιστα εξαιτίας αυτής της δομής, μπορεί εύκολα να παραχθεί με τη μορφή δισδιάστατων φύλλων μέσω φυσικών ή υγρών χημικών μεθόδων [82],[83] Προκειμένου να κατασταλεί ο πρωτεύων σχηματισμός ανισοτροπικών διδιάστατων δομών που είναι αναπόφευκτο προϊόν στην άμεση σύνθεση της φάσης του διαλύματος, τα σφαιρικά νανოსωματίδια Bi_2Te_3 συντίθεται μέσω μιας αντίδρασης δύο σταδίων [84]. Για παράδειγμα φαίνονται παρακάτω οι εικόνες για ένα σύνολο νανοςωματιδίων Bi και Bi_2Te_3 όπως αποτυπώνονται στο TEM.

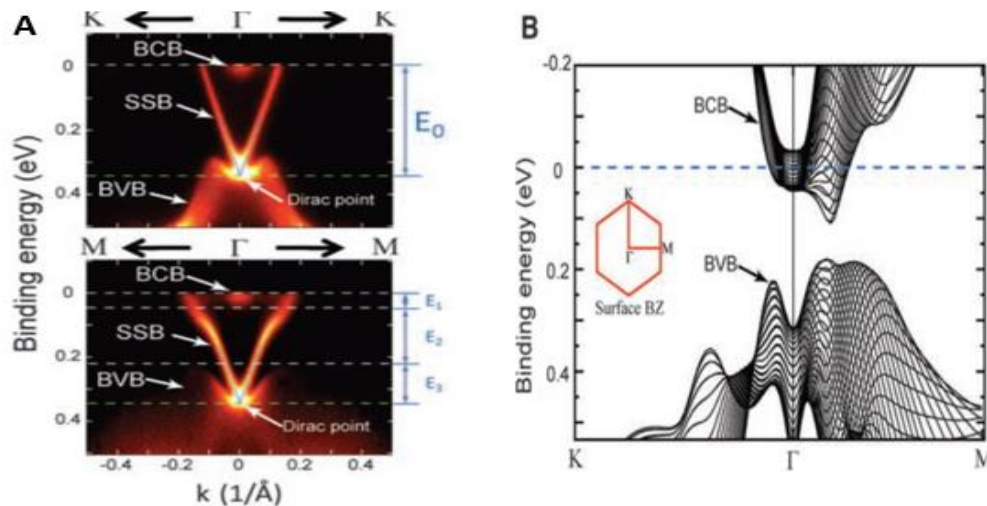


Εικόνα 8[84] : Σύνολο νανοςωματιδίων Bi και Bi_2Te_3 όπως αποτυπώνονται στο TEM

Τα νανοςωματίδια Bi είναι σχεδόν σφαιρικά με ακτίνα $14,4 \pm 2,3$ nm, ενώ σχήμα των νανοςωματιδίων Bi_2Te_3 αλλάζει σε ελαφρώς ρομβοεδρικό με μεγαλύτερη μέση ακτίνα 17,5 nm (τυπική απόκλιση 1,8 nm) λόγω της συμπερίληψης τελλουρίου.

Τα Bi_2Te_3 , Bi_2Se_3 είναι τοπολογικοί μονωτές με ενεργειακό χάσμα 0.16-0.30 eV, κάτι που επιτρέπει την πειραματική παρατήρηση των επιφανειακών καταστάσεων σε θερμοκρασία δωματίου [85],[86],[87].

Η Εικόνα 9A παρουσιάζει αποτελέσματα μετρήσεων angle-resolved photoemission spectroscopy (ARPES) για έναν κρύσταλλο Bi_2Se_3 , όπου φαίνεται η ύπαρξη ενός κώνου Dirac στο σημείο Γ της πρώτης ζώνης Brillouin [88], ενώ η θεωρητική πρόβλεψη μέσω DFT για το διάγραμμα ενεργειακών ζωνών του Bi_2Se_3 απεικονίζεται στην Εικόνα 9B [89].



Εικόνα 9[88,89]: A. Μετρήσεις angle-resolved photoemission spectroscopy (ARPES) για έναν κρύσταλλο Bi_2Se_3 . Υπολογισμένες ζώνες BCB και BVB κατά μήκος κατευθύνσεων υψηλής συμμετρίας της επιφάνειας BZ, με το χημικό δυναμικό να μετατοπίζεται σταθερά στα 45 meV πάνω από τον πυθμένα bcv στο Γ για να ταιριάζει με το πειραματικό αποτέλεσμα.

Συμπεριλαμβανομένης της αλληλεπίδρασης σπιν-τροχιάς (spin-orbit interaction-SOC), ο εκτενής κρύσταλλος Bi_2Se_3 είναι ένας ημιαγωγός με χάσμα περίπου 0.30 eV [μπλε χρώμα στην Εικόνα 9B], ενώ στην περίπτωση που ο κρύσταλλος έχει ελεύθερη επιφάνεια εμφανίζεται ένας κώνος Dirac στο σημείο Γ [κόκκινες γραμμές στην Εικόνα 9B].

Στα πλαίσια της παρούσας διπλωματικής εργασίας, μελετήθηκαν τα παραπάνω υλικά (Bi_2Te_3 και Bi_2Se_3) με στόχο να ερευνηθεί η φασική εξάρτηση οπτικών ιδιοτήτων τετρασταθμικών κβαντικών συστημάτων υπό την παρουσία μικροδομών χαλκογενιδίων του βισμούθιου.

3. Θεωρία Κβαντικού Εκπομπού και εξάρτηση από τη φάση

3.1 Εισαγωγή

Οι κβαντικές τεχνολογίες που βασίζονται σε νανοφωτονικές συσκευές βασίζονται σε ισχυρή αλληλεπίδραση μεταξύ ενός κβαντικού εκπομπού και του φωτός. Αυτή η αλληλεπίδραση μπορεί να ενισχυθεί με τη σύζευξη των εκπομπών σε μια νανοφωτονική δομή (περιβάλλον) που ενισχύει τους αντίστοιχους ρυθμούς εκπομπών αυξάνοντας την τοπική πυκνότητα καταστάσεων (LDOS) που είναι διαθέσιμη στο κβαντικό εκπομπό, επίσης γνωστή ως φαινόμενο Purcell.

Από την ανάλυση του Purcell το 1946 [20], έχει γίνει αντιληπτό ότι η αυθόρμητη εκπομπή κβαντικών εκπομπών, όπως άτομα, μόρια και κβαντικές κουκίδες, δεν είναι μια εγγενής ιδιότητα των εκπομπών, αλλά τροποποιείται από το περιβάλλον στο οποίο είναι ενσωματωμένος ο κβαντικός αγωγός [[90],[91] με ειδικά ηλεκτρομαγνητικά πεδία [92]. Συνήθως αυτά τα πεδία είναι μονοτροπικά με υψηλούς παράγοντες ποιότητας (Q) και μικρούς αποτελεσματικούς όγκους (V_{eff}). Αυτές οι ιδιότητες προκαλούν ενίσχυση εκπομπής, η οποία ορίζεται από τον παράγοντα Purcell:

$$F_p = \frac{\gamma_{cavity}}{\gamma_{free space}} \propto Q \left(\frac{\lambda^3}{V_{eff}} \right) \quad (1)$$

οπού γ είναι ο ρυθμός αποδιέγερσης του εκπομπού. Ο παράγοντας Purcell F_p , δηλαδή ο ρυθμός αυθόρμητης εκπομπής παρουσία φωτονικού περιβάλλοντος σε σχέση με τον ρυθμό αυθόρμητης εκπομπής στο κενό, είναι μια βασική ποσότητα στην κβαντική ηλεκτροδυναμική κοιλοτήτων (QED) που ποσοτικοποιεί τον ρυθμό σύζευξης μεταξύ ενός κβαντικού εκπομπού και ενός τρόπου κοιλότητας. Η δύναμη της αλληλεπίδρασης ανάμεσα στον εκπομπό και το πεδίο χαρακτηρίζεται από μια συχνότητα σύζευξης $g \propto \sqrt{\frac{1}{V_{eff}}}$. Συνεπώς το QCED μπορεί να χωριστεί σε δυο κατηγορίες που εξαρτώνται από την σύγκριση του g και των ρυθμών απόσβεσης του εκπομπού και της κοιλότητας (γ, κ). Αυτές οι δυο κατηγορίες είναι η ασθενής σύζευξη ($g \ll \gamma, \kappa$) και η ισχυρή σύζευξη ($g \gg \gamma, \kappa$) [92]

Η ακτινοβολία που παράγεται αρχικά από ένα QE, διασκορπίζεται από το φωτονικό περιβάλλον (κοντινά αντικείμενα) του κβαντικού εκπομπού και φτάνει πίσω στη θέση του εκπομπού, ενισχύοντας ή καταστέλλοντας τον ρυθμό αυθόρμητης εκπομπής. Για να επιτύχουμε σημαντική αύξηση του ρυθμού αποδιέγερσης χρειαζόμαστε μια οπτική κοιλότητα που αποθηκεύει το φως σε όσο το δυνατόν μικρότερο όγκο, για όσο το δυνατόν περισσότερο χρόνο. Στην κοιλότητα QED, οι αλληλεπιδράσεις φωτός-ύλης εξαρτώνται από τα χαρακτηριστικά γνωρίσματα της νανοδομής, όπως η σύνθεση του υλικού, το μέγεθος και η γεωμετρία καθώς και από το πεδίο ακτινοβολίας [93].

Παραδείγματα φωτονικών μικρο- και νανο-δομών που τροποποιούν την αυθόρμητη αποδιέγερση περιλαμβάνουν μικροκυματικές και οπτικές κοιλότητες, φωτονικούς κρυστάλλους, μεταϊλικά δείκτη διάθλασης, μικροκοιλότητες ημιαγωγών και πλασματικές νανοδομές. Πρόσφατα, εμφανίστηκε μια νέα κατηγορία υλικών, τα χαλκογενίδια του βισμούθιου όπως τα Bi_2Se_3 και Bi_2Te_3 , των οποίων η διηλεκτρική λειτουργία διαθέτει τεράστιες τιμές [94], [95] λόγω της παρουσίας ισχυρών φωνονικών συντονισμών στην περιοχή των THz που προκαλούν ενίσχυση υψηλού πεδίου και ισχυρό περιορισμό του φωτός στις επιφάνειές τους [79]. Στις νανοδομές ευγενών μετάλλων, η ενίσχυση Purcell φτάνει σε υψηλές τιμές χάρη στους συντονισμούς πλασμονίου, αλλά η σύζευξη με κβαντικούς εκπομπούς κοντά τους είναι λιγότερο αποτελεσματική λόγω των μεγάλων ωμικών απωλειών [96]. Από την άλλη, τα χαλκογενίδια του βισμούθιου παρουσιάζουν υψηλή βελτίωση του πεδίου στη περιοχή των THz λόγω πολαριτονικών διεγέρσεων και, σε συνδυασμό με σημαντικά χαμηλότερες ωμικές απώλειες, οδηγούν σε πολύ πιο αποτελεσματική σύζευξη με κβαντικούς εκπομπούς [97], [98]. Αυτές οι πολαριτονικές διεγέρσεις είναι ιδιοκαταστάσεις του ηλεκτρομαγνητικού πεδίου και, ως εκ τούτου, η αναντιστοιχία μεταξύ της χαμηλής πυκνότητας των ηλεκτρομαγνητικών τρόπων στον ελεύθερο χώρο και της υψηλής πυκνότητας των πολαριτονικών τρόπων στα χαλκογενίδια του βισμούθιου παράγει ένα μεγάλο LDOS γύρω από τα σωματίδια χαλκογενιδίων του βισμούθιου. Το υψηλό LDOS, με τη σειρά του, παράγει μια ισχυρή τροποποίηση και έλεγχο του ρυθμού αυθόρμητης εκπομπής ενός κοντινού κβαντικού εκπομπού. Στην περίπτωση μας οι διαθέσιμες λειτουργίες του ηλεκτρομαγνητικού πεδίου επηρεάζονται όχι μόνο από τη θέση και τη συχνότητα εκπομπής του κβαντικού εκπομπού, αλλά και από τον προσανατολισμό της διπολικής ροπής. Επομένως, ο ρυθμός αυθόρμητης εκπομπής ενός εκπομπού διπόλων διέπεται από τη μερική τοπική πυκνότητα των καταστάσεων (PLDOS) [99].

Η κβαντική συμβολή είναι ένα φαινόμενο που προκύπτει από την αυθόρμητη εκπομπή δύο σχεδόν εκφυλισμένων διεγερμένων καταστάσεων ενός QE σε μια κοινή θεμελιώδη κατάσταση με τρόπο που επιτρέπει την συμβολή μεταξύ των δύο διαδρομών αυθόρμητης εκπομπής. Το φάσμα της αυθόρμητης εκπομπής εξαρτάται σε μεγάλο βαθμό από τη δομή σε επίπεδο ενέργειας καθώς και από την αναδυόμενη κβαντική συνοχή. Ωστόσο, για να εμφανιστούν τα φαινόμενα συμβολής, οι διπολικές ροπές μετάβασης των δύο διαδρομών αυθόρμητης εκπομπής θα πρέπει να είναι μη ορθογώνιες.[93]

Ο Agarwal [100] έδειξε ότι αυτό το φαινόμενο μπορεί να χρησιμοποιηθεί για την προσομοίωση επιδράσεων κβαντικής παρεμβολής σε αυθόρμητες εκπομπές [101], [102], [103], [104], [105], [106]. Πρότεινε να τοποθετηθεί ένας κβαντικός εκπομπός τριών επιπέδων με ορθογώνιες διπολικές ροπές μέσα ή κοντά σε μια δομή που καταστέλλει την αυθόρμητη εκπομπή για έναν συγκεκριμένο διπολικό προσανατολισμό. Εφαρμόζοντας αυτή την ιδέα, αποδείχθηκε, χρησιμοποιώντας μια αυστηρή ηλεκτρομαγνητική τεχνική τανυστών του Green [107], [108], [109], ότι η τοποθέτηση ενός κβαντικού πομπού τύπου V τριών επιπέδων κοντά σε απλές, ή

πολύπλοκες, μεταλλικές νανοδομές μπορεί να ενισχύσει το βαθμό κβαντικής συμβολής στην αυθόρμητη εκπομπή.

Είναι κατανοητό συνεπώς ότι το φαινόμενο της κβαντικής συμβολής σε ένα κβαντικό εκπομπό μπορεί να οδηγήσει σε συναρπαστικά φαινόμενα στην κβαντική οπτική, όπως η σύμφωνη παγίδευση πληθυσμών, οι υψηλοί βαθμοί κβαντικής συμβολής (εναγκαλισμού), η αναστροφή, η οπτική διαφάνεια με αργό φως, η αύξηση χωρίς αναστροφή, η ενισχυμένη μη γραμμικότητα Kerr [93].

3.2 Θεωρητικό μοντέλο και υπολογισμός της γραμμικής επιδεκτικότητας.

Το κβαντικό σύστημα που μας απασχολεί παρουσιάζεται στην Εικόνα 10 [90]. Θεωρούμε ένα τετρασταθμικό σύστημα τεσσάρων επιπέδων με δύο ανώτερες καταστάσεις $|2\rangle$ και $|3\rangle$, και δύο κατώτερες $|0\rangle$ και $|1\rangle$. Θα ονομάσουμε αυτό το σύστημα ένα διπλό σύστημα τύπου V, προκειμένου να εντοπίσουμε εύκολα δύο διαφορετικές μεταβάσεις τύπου V τριών επιπέδων στη δομή. Το κβαντικό σύστημα βρίσκεται στο κενό σε απόσταση d από την επιφάνεια της πλασμονικής νανοδομίας. Παίρνουμε τις καταστάσεις $|2\rangle$ και $|3\rangle$ για να χαρακτηρίσουμε δύο υποεπίπεδα Zeeman. Το διάνυσμα της διπολικής ροπής ορίζεται ως:

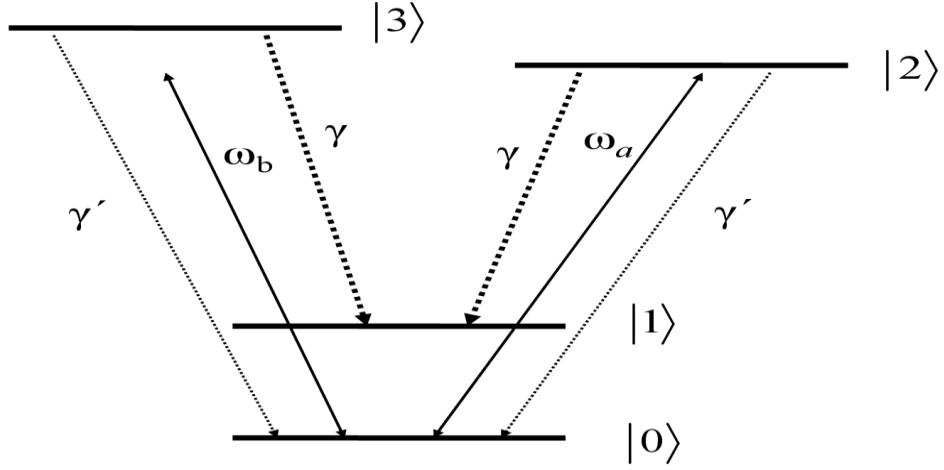
$$\vec{\mu} = \mu'(|2\rangle\langle 0|\hat{\epsilon}_- + |3\rangle\langle 0|\hat{\epsilon}_+) + \mu(|2\rangle\langle 1|\hat{\epsilon}_- + |3\rangle\langle 1|\hat{\epsilon}_+) + H.c., \quad (1)$$

Όπου το $\hat{\epsilon}_{\pm} = (\hat{\epsilon}_z \pm i\hat{\epsilon}_x)/\sqrt{2}$ περιγράφει το δεξιά περιστρεφόμενο διάνυσμα ($\hat{\epsilon}_+$) και το αριστερά περιστρεφόμενο ($\hat{\epsilon}_-$), ενώ τα μοναδιαία διανύσματα και μ , μ' θεωρούνται πραγματικά.

Το κβαντικό σύστημα αλληλεπιδρά με δύο συνεχή κυκλικά πολωμένα ηλεκτρομαγνητικά πεδία των οποίων η συνολική ένταση είναι:

$$\vec{E}(t) = \hat{\epsilon}_+ E_a \cos(\omega_a t + \varphi_a) + \hat{\epsilon}_- E_b \cos(\omega_b t + \varphi_b), \quad (2)$$

όπου E_a και E_b είναι το πλάτος των δύο ηλεκτρικών πεδίων, ω_a και ω_b είναι η γωνιακή τους συχνότητα και φ_a και φ_b είναι η φάση του κάθε πεδίου. Το πεδίο λέιζερ έντασης E_a προκαλεί τη σύζευξη της κατάστασης $|0\rangle$ με τη κατάσταση $|2\rangle$ και το πεδίο λέιζερ έντασης E_b προκαλεί αντίστοιχα σύζευξη της κατάστασης $|0\rangle$ με τη κατάσταση $|3\rangle$. Υποθέτουμε ότι και τα δύο πεδία έχουν ίσες συχνότητες $\omega_a = \omega_b = \omega$.



Εικόνα 10[90]: Το υπό μελέτη κβαντικό σύστημα είναι ένα διπλό σύστημα τύπου V όπου δύο ανώτερες καταστάσεις $|2\rangle$ και $|3\rangle$ αποδιεγείρονται με αυθόρμητη εκπομπή στις δύο κατώτερες καταστάσεις $|0\rangle$ και $|1\rangle$. Το σύστημα αλληλεπιδρά επίσης με δύο κυκλικά πολωμένα ασθενή πεδία λέιζερ με ίσες συχνότητες $\omega_a = \omega_b$. Το πεδίο λέιζερ a προκαλεί σύζευξη της κατάστασης $|0\rangle$ με τη κατάσταση $|2\rangle$ και το πεδίο λέιζερ b προκαλεί σύζευξη της κατάστασης $|0\rangle$ με τη κατάσταση $|3\rangle$.

Η Χαμιλτονιανή που περιγράφει την αλληλεπίδραση του ηλεκτρομαγνητικού πεδίου με το κβαντικό σύστημα, σύμφωνα με τις προσεγγίσεις διπόλου και περιστρεφόμενου κύματος δίνεται ως:

$$H = \hbar \left(-\delta - \frac{\omega_{32}}{2} \right) |2\rangle \langle 2| + \hbar \left(-\delta + \frac{\omega_{32}}{2} \right) |3\rangle \langle 3| - \left(\frac{\hbar \Omega_a e^{i\phi a}}{2} |0\rangle \langle 2| + \frac{\hbar \Omega_b e^{i\phi b}}{2} |0\rangle \langle 3| + H.c \right), \quad (3)$$

Στην προκειμένη περίπτωση, $\delta = \omega - \tilde{\omega}$, είναι η συχνότητα αποδιέγερσης με τις μέσες ενέργειες μετάβασης των καταστάσεων $|2\rangle$ και $|3\rangle$ από τη κατάσταση $|0\rangle$. Το $\tilde{\omega}$ ορίζεται ως $\tilde{\omega} = (\omega_3 + \omega_2)/2 - \omega_0$, $\omega_{32} = (\omega_3 - \omega_2)/2$, και Ω_a , Ω_b είναι οι συχνότητες Rabi των αντίστοιχων πεδίων που ορίζονται ως $\Omega_a = \mu' E_a / \hbar$ και $\Omega_b = \mu' E_b / \hbar$. Επίσης $\hbar \omega_n$, με το n να παίρνει τιμές από 0-3, είναι η ενέργεια των καταστάσεων $|n\rangle$.

Και οι δύο διεγερμένες καταστάσεις $|2\rangle$ και $|3\rangle$ αποδιεγείρονται αυθόρμητα, στη κατάσταση $|0\rangle$, με ρυθμό αποδιέγερσης $2\gamma_2'$ και $2\gamma_3'$ αντίστοιχα, και στη κατάσταση $|1\rangle$, με ρυθμό αποδιέγερσης $2\gamma_2$ και $2\gamma_3$ αντίστοιχα. Θεωρούμε ότι οι μεταβάσεις από την $|2\rangle$ και $|3\rangle$ στην $|1\rangle$ βρίσκονται εντός των ζωνών επιφανειακού πλασμονίου της πλασμονικής νανοδομής, ενώ οι μεταβάσεις από την $|2\rangle$ και $|3\rangle$ στην $|0\rangle$ είναι φασματικά απομακρυσμένες από τις ζώνες επιφανειακού πλασμονίου και δεν επηρεάζονται από την πλασμονική νανοδομή. Γι αυτό στις μεταβάσεις από την $|2\rangle$ και $|3\rangle$ στην $|0\rangle$ η αυθόρμητη αποδιέγερση συμβαίνει λόγω της αλληλεπίδρασης του κβαντικού συστήματος με το κενό. Επιλέγουμε η ενεργειακή διαφορά των καταστάσεων $|2\rangle$ και $|3\rangle$ να είναι σχετικά μικρή, και για αυτό το ω_{32} να είναι της τάξης του Γ_0 , όπου το Γ_0 είναι ο ρυθμός αποδιέγερσης των καταστάσεων $|2\rangle$ και $|3\rangle$ στην $|1\rangle$ στο κενό. Το τελευταίο θεωρείται ότι είναι το ίδιο και για τις δύο καταστάσεις. Μπορούμε λοιπόν να υποθέσουμε ότι $\gamma_2 = \gamma_3 = \gamma$ και $\gamma_2' = \gamma_3' = \gamma'$ ([110]).

Η αυθόρμητη αποδιέγερση στο παραπάνω σύστημα μελετάται με μια προσέγγιση πίνακα πυκνότητας καταστάσεων. Λαμβάνοντας υπόψη αποκλειστικά τις αυθόρμητες επιδράσεις εκπομπής, οι χρονοεξαρτώμενες εξισώσεις (στοιχεία του πίνακα πυκνότητας καταστάσεων) που περιγράφουν την αλληλεπίδραση του ατόμου με το περιβάλλον του, προκύπτουν ως:

$$\begin{aligned} \dot{\rho}_{00}(t) = & 2\gamma'[\rho_{22}(t) + \rho_{33}(t)] - i\frac{\Omega_\alpha}{2}[\rho_{02}(t)e^{-i\varphi_\alpha} - \rho_{20}(t)e^{i\varphi_\alpha}] \\ & - i\frac{\Omega_b}{2}[\rho_{03}(t)e^{-i\varphi_b} - \rho_{30}(t)e^{i\varphi_b}], \quad (4) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \dot{\rho}_{22}(t) = & -2(\gamma + \gamma')\rho_{22}(t) - i\frac{\Omega_\alpha}{2}[\rho_{02}(t)e^{-i\varphi_\alpha} - \rho_{20}(t)e^{i\varphi_\alpha}] \\ & - \kappa[\rho_{23}(t) + \rho_{32}(t)], \quad (5) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \dot{\rho}_{33}(t) = & -2(\gamma + \gamma')\rho_{33}(t) + i\frac{\Omega_b}{2}[\rho_{03}(t)e^{-i\varphi_b} - \rho_{30}(t)e^{i\varphi_b}] \\ & - \kappa[\rho_{23}(t) + \rho_{32}(t)] \quad (6) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \dot{\rho}_{20}(t) = & \left(i\delta + i\frac{\omega_{32}}{2} - \gamma - \gamma'\right)\rho_{20}(t) + i\frac{\Omega_\alpha}{2}e^{-i\varphi_\alpha}[\rho_{00}(t) - \rho_{22}(t)] \\ & - i\frac{\Omega_b}{2}e^{-i\varphi_b}\rho_{23}(t) - \kappa\rho_{30}(t), \quad (7) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \dot{\rho}_{30}(t) = & \left(i\delta - i\frac{\omega_{32}}{2} - \gamma - \gamma'\right)\rho_{30}(t) + i\frac{\Omega_b}{2}e^{-i\varphi_b}[\rho_{00}(t) - \rho_{33}(t)] \\ & - i\frac{\Omega_\alpha}{2}e^{-i\varphi_\alpha}\rho_{32}(t) - \kappa\rho_{20}(t), \quad (8) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \dot{\rho}_{23}(t) = & (i\omega_{32} - 2\gamma - 2\gamma')\rho_{23}(t) + i\frac{\Omega_\alpha}{2}e^{-i\varphi_\alpha}\rho_{03}(t) \\ & - i\frac{\Omega_b}{2}e^{-i\varphi_b}\rho_{20}(t)] - \kappa[\rho_{22}(t) + \rho_{33}(t)], \quad (9) \end{aligned}$$

$$\text{όπου: } \rho_{00}(t) + \rho_{11}(t) + \rho_{22}(t) + \rho_{33}(t) = 1, \rho_{nm}(t) = \rho_{mn}^*(t)$$

Εδώ το κ είναι η σταθερά σύζευξης μεταξύ των καταστάσεων $|2\rangle$ και $|3\rangle$ εξαιτίας της αυθόρμητης εκπομπής σε ένα ανισοτροπικό περιβάλλον κενού [100] και είναι υπεύθυνη για την εμφάνιση της κβαντικής εκπομπής.

Οι παράμετροι γ, κ έχουν οριστεί ως [111], [112], [113], [114]:

$$\gamma = \frac{\mu_0 \mu^2 \bar{\omega}^2}{\hbar} \hat{\epsilon}_- \cdot \text{Im} \mathbf{G}(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; \bar{\omega}) \cdot \hat{\epsilon}_+, \quad (10)$$

$$\kappa = \frac{\mu_0 \mu^2 \bar{\omega}^2}{\hbar} \hat{\epsilon}_+ \cdot \text{Im} \mathbf{G}(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; \bar{\omega}) \cdot \hat{\epsilon}_+. \quad (11)$$

Εδώ, το $G(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; \omega)$ είναι ο ΗΜ τανυστής Green, όπου το \mathbf{r} αναφέρεται στη θέση του κβαντικού επομπού και το μ_0 είναι η διαπερατότητα του κενού. Επίσης $\bar{\omega} = (\omega_3 + \omega_2)/2 - \omega_1$.

Ο τανυστής Green υπακούει στην εξίσωση

$$\nabla \times \nabla \times \mathbf{G}(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; \bar{\omega}) - \frac{\epsilon(\mathbf{r}, \omega) \omega^2}{c^2} \mathbf{G}(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; \bar{\omega}) = \mu_0 \mathbf{I} \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}'), \quad (12)$$

όπου, $\epsilon(\mathbf{r}, \omega)$ είναι η χωρικά και εξαρτώμενη από τη συχνότητα διηλεκτρική συνάρτηση του συστήματος, $\mathbf{I} = e_x e_x + e_y e_y + e_z e_z$ είναι ο μοναδιαίος τανυστής και c είναι η ταχύτητα του φωτός στο κενό.

Έτσι λοιπόν από τις Εξ. (10),(11) λαμβάνουμε τις τιμές των γ και κ [90] ως:

$$\gamma = \frac{\mu_0 \mu^2 \bar{\omega}^2}{2\hbar} \text{Im}[G_{\perp}(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; \bar{\omega}) + G_{\parallel}(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; \bar{\omega})] = \frac{1}{2}(\Gamma_{\perp} + \Gamma_{\parallel}), \quad (13)$$

$$\kappa = \frac{\mu_0 \mu^2 \bar{\omega}^2}{2\hbar} \text{Im}[G_{\perp}(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; \bar{\omega}) - G_{\parallel}(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; \bar{\omega})] = \frac{1}{2}(\Gamma_{\perp} - \Gamma_{\parallel}), \quad (14)$$

Εδώ, τα $G_{\perp}(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; \bar{\omega}) = G_{zz}(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; \bar{\omega})$, $G_{\parallel}(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; \bar{\omega}) = G_{xx}(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; \bar{\omega})$ υποδηλώνουν τα στοιχεία του ηλεκτρομαγνητικού τανυστή Green όπου το σύμβολο \perp και \parallel αναφέρεται σε ένα κάθετα προσανατολισμένο δίπολο κατά μήκος του άξονα z και αντίστοιχα παράλληλα προσανατολισμένο κατά μήκος του άξονα x , στην επιφάνεια της πλασμονικής νανοδομής. Τέλος, ορίζουμε $\Gamma_{\perp, \parallel} = \mu_0 \mu^2 \bar{\omega}^2 \text{Im}[G_{\perp, \parallel}(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; \bar{\omega})]/\hbar$ τους αυθόρμητους ρυθμούς εκπομπής, κάθετους και παράλληλους προς την επιφάνεια. Ο βαθμός κβαντικής συμβολής ορίζεται ως:

$$p = \frac{\Gamma_{\perp} - \Gamma_{\parallel}}{\Gamma_{\perp} + \Gamma_{\parallel}}, \quad (15)$$

Για $p = 1$ έχουμε μέγιστη κβαντική συμβολή στην αυθόρμητη εκπομπή. Αυτό μπορεί να επιτευχθεί τοποθετώντας τον εκπομπό κοντά σε μια δομή που μειώνει δραματικά το Γ_{\parallel} . Τονίζουμε ότι όταν ο εκπομπός τοποθετείται στο κενό, $\Gamma_{\perp} = \Gamma_{\parallel}$ και $\kappa = 0$, οπότε δεν εμφανίζεται κβαντική συμβολή στο σύστημα.

Ο ρυθμός αυθόρμητης εκπομπής για ένα ζεύγος σφαιρών Bi_2Se_3 ή Bi_2Te_3 διέπεται από τη μερική τοπική πυκνότητα των καταστάσεων (PLDOS), οι οποίες μπορούν να υπολογιστούν κλασικά και εξαρτώνται μόνο από το φωτονικό περιβάλλον [93]. Οι διηλεκτρικές συναρτήσεις των υλικών περιγράφονται από [95]

$$\epsilon(\omega) = \sum_{j=\alpha, \beta, f} \frac{\omega_{pj}^2}{\omega_{0j}^2 - \omega^2 - i\gamma_j \omega}, \quad (16)$$

Οι δείκτες που εμφανίζονται στο άθροισμα της εξίσωσης (16) προέρχονται από συνεισφορές α και β φωνονίων, καθώς και από μεταφορείς μηδενικού φορτίου f . Οι αντίστοιχες παράμετροι για τους τρεις όρους που εμφανίζονται στην Εξίσωση (16) λαμβάνονται από πειραματικά δεδομένα που μπορούν να βρεθούν στον Πίνακα 1 του [95]. Παρόλο που η διηλεκτρική συνάρτηση των Bi_2Te_3 Bi_2Se_3 περιέχει έναν επιπλέον όρο που αντιπροσωπεύει τις επιφανειακές καταστάσεις και είναι αντιστρόφως ανάλογος με την ακτίνα της σφαίρας [79], αποδεικνύεται ότι αυτός ο όρος είναι σημαντικός μόνο για νανοσφαιρίδια και επομένως είναι αμελητέος στην περίπτωση μας.

Ο υπολογισμός του αυθόρμητου ρυθμού εκπομπής καθώς και του αντίστοιχου συντελεστή Purcell για τον κβαντικό εκπομπό που είναι ενσωματωμένος στο κενό μεταξύ των μικροσφαιριδίων χαλκογενιδίου του βισμούθιου, γίνεται με βάση τα παρακάτω: Οι εξισώσεις Maxwell στο πεδίο συχνότητας έχουν ως αποτέλεσμα την ακόλουθη σχέση γνωστή ως θεώρημα Poynting:

$$\int_S \mathbf{S} \cdot \mathbf{n} dA = -\frac{1}{2} \int_V \text{Re}(\mathbf{j} \times \mathbf{E}) dV, \quad (17)$$

όπου \mathbf{S} είναι το διάνυσμα Poynting και \mathbf{n} επιφανειακό διάνυσμα. Η Εξ.17, χρησιμοποιείται για να ποσοτικοποιήσουμε την ισχύ που εκπέμπουν τα δίπολα σε διαφορετικά περιβάλλοντα με την αξιολόγηση και των δύο πλευρών αυτής της εξίσωσης. Ο συντελεστής Purcell, λοιπόν, λαμβάνεται ως ο λόγος της συνολικής ισχύος που εκπέμπεται από τον κβαντικό εκπομπό με και χωρίς την παρουσία ενός συγκεκριμένου φωτονικού περιβάλλοντος. Ο συντελεστής Purcell μπορεί να προσδιοριστεί με την ενσωμάτωση του υπολογιζόμενου διανύσματος Poynting σε μια επιφάνεια που περικλείει μόνο τον κβαντικό εκπομπό, και όχι τα όρια της κοιλότητας ή των μικροσωματιδίων [107], ως

$$F_p = \frac{\Gamma}{\Gamma_0} = \frac{P}{P_0}, \quad (18)$$

όπου P είναι η συνολική ισχύς που ακτινοβολείται από τον κβαντικό εκπομπό ενσωματωμένο σε ένα συγκεκριμένο φωτονικό περιβάλλον και P_0 είναι η ακτινοβολούμενη ισχύς του κβαντικού εκπομπό στο κενό. Με τον ίδιο τρόπο, Γ είναι ο ρυθμός εκπομπής του κβαντικού εκπομπό που είναι ενσωματωμένο σε φωτονικό περιβάλλον και Γ_0 είναι ο ρυθμός εκπομπής του κβαντικού εκπομπό στο κενό.

Η απόκριση απορρόφησης και διάθλασης για ένα ασθενές πεδίο λέιζερ α καθορίζεται από τη γραμμική διηλεκτρική επιδεκτικότητα η οποία δίνεται από [115]:

$$\chi^{(1)}(\omega) = \frac{2N\mu'}{\epsilon_0 E_\alpha e^{-i\phi_\alpha}} \rho_{20}^{(1)} = \frac{2N\mu' \rho_{20}^{(1)}}{\epsilon_0 \hbar \Omega_\alpha}, \quad (19)$$

όπου $\rho_{20}^{(1)}$ υπολογίζεται σε στάσιμη κατάσταση και σε πρώτη τάξη σε όρους E_α (ή Ω_α), ϵ_0 είναι η επιτρεπτότητα κενού και N είναι η πυκνότητα των κβαντικών καταστάσεων. Χρησιμοποιώντας τη θεωρία διαταραχών και υποθέτοντας ότι και τα δύο πεδία α και β είναι ασθενή, λαμβάνουμε από τις Εξ.4-9

$$\rho_{20}^{(1)} = \frac{i\Omega_\alpha e^{-i\phi_a} \left(-i\delta + i\frac{\omega_{32}}{2} + \gamma + \gamma'\right) - i\kappa \frac{\Omega_b}{2} e^{-i\phi_b}}{\left(-i\delta + i\frac{\omega_{32}}{2} + \gamma + \gamma'\right) \left(-i\delta - i\frac{\omega_{32}}{2} + \gamma + \gamma'\right) - \kappa^2}. \quad (20)$$

Αντικαθιστούμε στη συνέχεια την Εξ.20 στην Εξ.19 και παίρνουμε:

$$\chi^{(1)}(\delta) = \frac{N\mu' \rho_{20}^{(1)}}{\varepsilon_0 \hbar \Omega_\alpha} \frac{\delta - \frac{\omega_{32}}{2} + i\gamma + i\gamma' - i\kappa \frac{E_b}{E_\alpha} e^{i\varphi}}{\left(-i\delta + i\frac{\omega_{32}}{2} + \gamma + \gamma'\right) \left(-i\delta - i\frac{\omega_{32}}{2} + \gamma + \gamma'\right) - \kappa^2}, \quad (21)$$

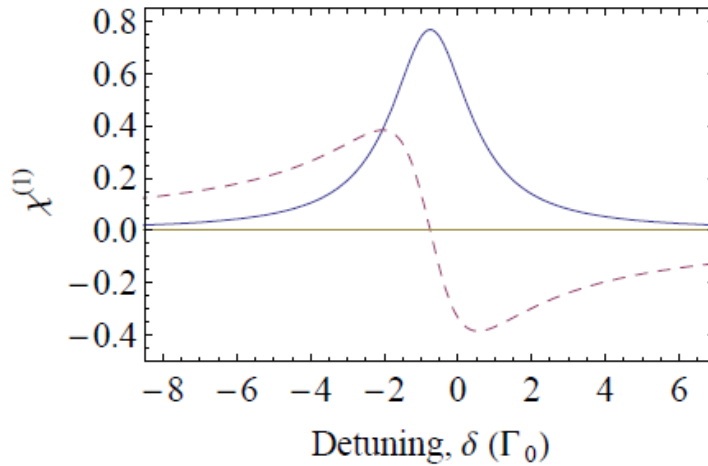
όπου $\varphi = \varphi_\alpha - \varphi_b$ είναι η διαφορά φάσης μεταξύ των δύο εφαρμοζόμενων πεδίων.

4. Αποτελέσματα – Συζήτηση

4.1 2D πλασματική νανοδομή εφαιπτόμενων νανοσφαιριδίων πυριτίου με μεταλλική επικάλυψη

Αρχικά έχει αξία να παρατηρήσουμε στην Εικόνα 11 [90] το πραγματικό μέρος (που καθορίζει τη διασπορά) και το φανταστικό (που καθορίζει την απορρόφηση) της διηλεκτρικής σταθεράς $\chi^{(1)}$ ως συνάρτηση του αποσυντονισμού δ με το κβαντικό σύστημα στο κενό, δηλαδή χωρίς την παρουσία της πλασματικής νανοδομής. Σε αυτή την περίπτωση:

$$\chi^{(1)}(\delta) = \frac{N\mu' \delta - \frac{\omega_{32}}{2} + i\Gamma_0 + i\gamma' - i\kappa \frac{E_b}{E_\alpha} e^{i\varphi}}{\varepsilon_0 \hbar (-i\delta + \Gamma_0 + \gamma')^2 + \frac{\omega_{32}'}{4}}, \quad (22)$$



Εικόνα 11[90]: Το φάσμα απορρόφησης [$Im(\chi^{(1)})$, συμπαγής καμπύλη] και το φάσμα διασποράς [$Re(\chi^{(1)})$, διακεκομμένη καμπύλη] του κβαντικού συστήματος σε μονάδες $\frac{N\mu'}{\varepsilon_0 \hbar \Gamma_0}$ όπως προκύπτει από την Εξ.22 απουσία πλασματικής νανοδομής. Θεωρήσαμε $\omega_{32} = 1,5 \Gamma_0$ και $\gamma = 0,3 \Gamma_0$.

Όμως οι ιδιότητες απορρόφησης και διασποράς είναι πολύ διαφορετικές όταν το κβαντικό σύστημα βρίσκεται κοντά στην πλασματική νανοδομή. Στην υπολογιστική ανάλυση ορίσαμε τα εξής:

$$A = \frac{N\mu'}{\varepsilon_0 \hbar}, \tilde{\alpha} = \frac{\omega_{32}}{2}, \tilde{\gamma} = \gamma + \gamma', x = \frac{E_b}{E_\alpha}, \alpha = \alpha(\varphi, x) = \kappa x \sin\varphi - \tilde{\alpha}, \beta = \beta(\varphi, x) = \tilde{\gamma} - \kappa x \cos\varphi, \varepsilon = \tilde{\alpha}^2 + \tilde{\gamma}^2 - \kappa^2 = \tilde{\alpha}^2 + (\Gamma_{\parallel} + \gamma')(\Gamma_{\perp} + \gamma') (> 0)$$

και $\zeta = -2\tilde{\gamma} (< 0)$.

Στη συνέχεια, τα πραγματικά και φανταστικά μέρη της διηλεκτρικής επιδεκτικότητας της Εξ.21 δίνονται ως

$$Re[\chi^{(1)}(\delta)] = A \frac{(\alpha + \delta)(\varepsilon - \delta^2) + \beta\zeta\delta}{(\varepsilon - \delta^2)^2 + \zeta^2\delta^2}, \quad (23)$$

$$Im[\chi^{(1)}(\delta)] = A \frac{\beta(\varepsilon - \delta^2) - \zeta\delta(\alpha + \delta)}{(\varepsilon - \delta^2)^2 + \zeta^2\delta^2}, \quad (24)$$

Μελετήσαμε λοιπόν πρώτα, μια 2D πλασματική νανοδομή εφαιπτόμενων νανοσφαιριδίων πυριτίου με επικάλυψη μετάλλων. Η διηλεκτρική σταθερά του νανοκελύφους παρέχεται από μια ηλεκτρική επιδεκτικότητα, η οποία με βάση το μοντέλο Drude δίνεται από τη σχέση

$$\varepsilon(\omega) = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega \left(\omega + \frac{i}{\tau} \right)}, \quad (25)$$

όπου ω_p είναι η συχνότητα πλάσματος και τ ο χρόνος χαλάρωσης των ηλεκτρονίων της ζώνης αγωγιμότητας του μετάλλου. Μια τυπική τιμή της συχνότητας πλάσματος για τον χρυσό είναι $\hbar\omega_p = 8,99eV$. Η διηλεκτρική σταθερά του SiO_2 θεωρείται ότι είναι $\varepsilon = 2,1$. Ταυτόχρονα έχουμε θεωρήσει $\tau^{-1} = 0,05\omega_p$. Η σταθερά πλέγματος του τετραγωνικού πλέγματος είναι $\alpha = 2c/\omega_p$ και η ακτίνα της σφαίρας είναι $S = c/\omega_p$ με ακτίνα πυρήνα $S_c = 0,7c/\omega_p$.

Ο δείκτης διάθλασης ενός αέριου μέσου σε συνθήκες πίεσης ≈ 1 Torr μπορεί να φτάσει τιμές τόσο υψηλές όσο 10 ή 100 σε συχνότητες κοντά σε έναν οπτικό συντονισμό. Για να υπάρξει όμως μια τόσο μεγάλη τιμή διασποράς χρειάζεται συνήθως να συνοδευτεί από υψηλή απορρόφηση. Ωστόσο, είναι πλέον αποδεδειγμένον [116] ότι υπάρχει ένας τρόπος για να επιτευχθεί ένας εξαιρετικά υψηλός δείκτης διάθλασης κοντά σε ατομικό συντονισμό, ακυρώνοντας παράλληλα την απορρόφηση, με το φαινόμενο της κβαντικής συμβολής να παίζει καθοριστικό ρόλο. Έτσι είναι δυνατόν να υπάρξει ακύρωση της απορρόφησης σε ορισμένες συχνότητες κοντά σε έναν ατομικό συντονισμό, γεγονός που έχει οδηγήσει στην παρατήρηση μη απορροφητικών συντονισμών [117],[118],[119] και στην πρόβλεψη του lasing χωρίς αναστροφή [120].

Για αυτό το λόγο αρχικά παρουσιάζουμε τις συνθήκες που αντιστοιχούν σε μηδενική απορρόφηση ($Im[\chi^{(1)}(\delta)] = 0$) αλλά μη μηδενική διασπορά $Re[\chi^{(1)}(\delta)] \neq 0$, που οδηγεί σε ενίσχυση του δείκτη διάθλασης χωρίς απορρόφηση.

Διαπιστώνουμε ότι αυτό συμβαίνει σε αποσυντονισμούς [90]

$$\delta_{\pm} = \frac{\tilde{\gamma}(\tilde{\alpha} - \kappa x \sin \phi) \pm \sqrt{\tilde{\gamma}^2(\tilde{\alpha} - \kappa x \sin \phi)^2 + \varepsilon(\kappa^2 x^2 \cos^2 \phi - \tilde{\gamma}^2)}}{\tilde{\gamma} + \kappa x \cos \phi}, \quad (26)$$

Αυτό επιτυγχάνεται εάν η ποσότητα στην τετραγωνική ρίζα είναι θετική ή μηδενική, οδηγώντας σε

$$\tilde{\gamma}^2(\tilde{\alpha} - \kappa x \sin \phi)^2 \geq \varepsilon(\tilde{\gamma}^2 - \kappa^2 x^2 \cos^2 \phi), \quad (27)$$

Συνεπώς όταν $\delta = 0$ ή $\omega = \tilde{\omega}$ (στη συγκεκριμένη συχνότητα το σύστημα παρουσιάζει ισχυρή καταστολή απορρόφησης όταν αλληλεπιδρά με ένα γραμμικά πολωμένο πεδίο λέιζερ) [110] προκύπτει ότι $x^2 k^2 \cos^2 \varphi = \tilde{\gamma}^2$ ή για $\cos \varphi > 0$

$$\frac{E_b}{E_\alpha} = \frac{\Gamma_\perp + \Gamma_\parallel + 2\gamma'}{(\Gamma_\perp - \Gamma_\parallel) \cos \varphi}, \quad (28)$$

υπό την προϋπόθεση ότι $\Gamma_\perp \neq \Gamma_\parallel$. Σε αυτή τη περίπτωση

$$Re[\chi^{(1)}(\delta = 0)] = A \frac{\alpha}{\varepsilon} = \frac{N\mu'^2 - \omega_{32} + (\Gamma_\perp + \Gamma_\parallel) + 2\gamma' \tan \phi}{2\varepsilon_0 \hbar \frac{\omega_{32}^2}{4} + (\Gamma_\parallel + \gamma')(\Gamma_\perp + \gamma')}, \quad (29)$$

Στη συνέχεια, παρουσιάζονται τις συνθήκες για πλήρη οπτική διαφάνεια $\chi^{(1)}(\delta) = 0$. Με βάση τις Εξ.23,24 παρατηρούμε ότι κάτι τέτοιο συμβαίνει όταν $\beta = 0$ and $\delta = -\alpha$, ή όταν

$$\frac{E_b}{E_\alpha} \cos \varphi = \frac{\Gamma_\perp + \Gamma_\parallel + 2\gamma'}{(\Gamma_\perp - \Gamma_\parallel)}, \quad (30)$$

$$\text{και } \delta = \frac{\omega_{32}}{2} - \frac{\Gamma_\perp - \Gamma_\parallel}{2} \frac{E_b}{E_\alpha} \sin \phi, \quad (31)$$

Αυτό σημαίνει ότι η ακριβής οπτική διαφάνεια είναι δυνατή για το λέιζερ α σε αυτό το σύστημα εφόσον $\Gamma_\perp \neq \Gamma_\parallel$ που είναι μια τυπική περίπτωση δίπλα στην πλασματική νανοδομή [121]. Επιπλέον, η οπτική διαφάνεια εδώ είναι ακριβής και όχι κατά προσέγγιση και μπορεί να συμβεί ανεξάρτητα από την τιμή του ρυθμού αποδιέγερσης ελεύθερου χώρου γ' .

Επιπλέον, όταν το ϕ ικανοποιεί τις Εξ.30,31 παρέχει πλήρη οπτική διαφάνεια [90] στο

$$\delta = \frac{\omega_{32}}{2} - \frac{1}{2} \sqrt{(\Gamma_\perp - \Gamma_\parallel)^2 \frac{E_b^2}{E_\alpha^2} - (\Gamma_\perp + \Gamma_\parallel + 2\gamma')^2}, \quad (32)$$

Αξίζει να σημειωθεί ότι αν η ποσότητα στην τετραγωνική ρίζα είναι θετική ή μηδενική τότε μπορεί πάντα να επιτευχθεί στο σύστημα πλήρης οπτική διαφάνεια. Όταν $\delta = 0$, λαμβάνεται η πλήρης οπτική διαφάνεια για

$$\tan \varphi = \frac{\omega_{32}}{\Gamma_\perp + \Gamma_\parallel + 2\gamma'}, \quad (33)$$

$$\text{και } \frac{E_b}{E_\alpha} = \frac{\sqrt{\omega_{32}^2 + (\Gamma_\perp + \Gamma_\parallel + 2\gamma')^2}}{\Gamma_\perp - \Gamma_\parallel}, \quad (34)$$

Αν $\omega_{32} = 0$, τότε $\phi = n\pi$ με $n = 0, 1, 2, \dots$ και η Εξ.34 γίνεται

$$\frac{E_b}{E_a} = \frac{\Gamma_{\perp} + \Gamma_{\parallel} + 2\gamma'}{\Gamma_{\perp} - \Gamma_{\parallel}}, \quad (35)$$

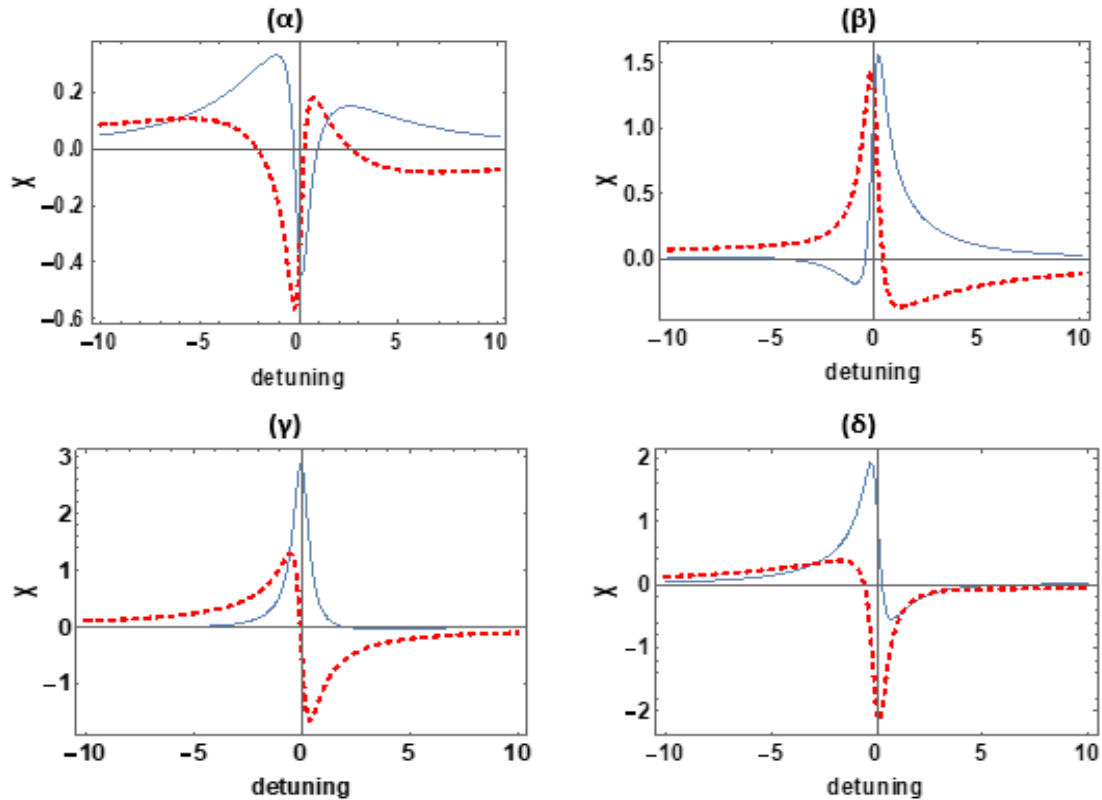
Η οποία για $\gamma' = 0$, υπό την προϋπόθεση ότι $\Gamma_{\perp} \gg \Gamma_{\parallel}$ (τυπική περίπτωση δίπλα στην υπό μελέτη πλασματική νανοδομή), δίνει περίπου $E_a \approx E_b$.

Επιπλέον, μπορούμε να αποκτήσουμε κέρδος ($Im[\chi^{(1)}(\tilde{\omega})] < 0$) στο σύστημα, το οποίο είναι χωρίς αναστροφή καθώς η συντριπτική πλειοψηφία του πληθυσμού παραμένει στη κατάσταση $|0\rangle$. Η προϋπόθεση για κέρδος χωρίς αναστροφή δίνεται επίσης από την Εξ.27. Έτσι μπορούμε να αποκτήσουμε κέρδος χωρίς αναστροφή μεταξύ των τιμών του δ_- και του δ_+ όταν $\tilde{\gamma} + k\kappa\cos\phi > 0$ ή

$$(\Gamma_{\perp} - \Gamma_{\parallel}) \frac{E_b}{E_a} \cos\phi + \Gamma_{\perp} + \Gamma_{\parallel} + 2\gamma' > 0, \quad (36)$$

η οποία, για $\cos\phi > 0$, ικανοποιείται πάντα δίπλα στην πλασματική νανοδομή. Στην περίπτωση όμως $\tilde{\gamma} + k\kappa\cos\phi < 0$, έχουμε κέρδος εκτός της περιοχής $[\delta_-, \delta_+]$.

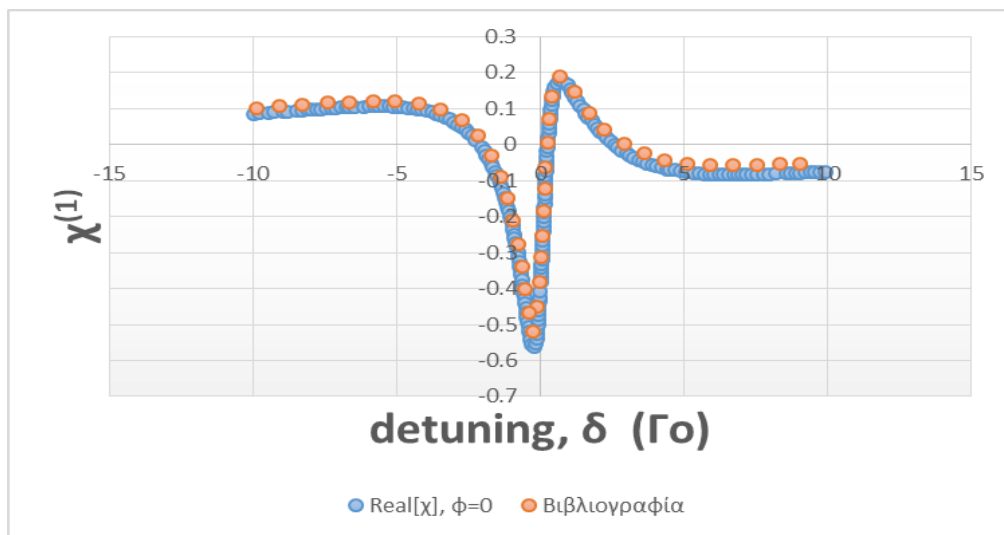
Στην Εικόνα 12 παρουσιάζουμε παραδείγματα των φασμάτων απορρόφησης και διασποράς για διαφορετικές φάσεις ϕ και για $E_b/E_a = 1,5$ όταν το κβαντικό σύστημα τοποθετείται σε απόσταση $d = 0,4c/\omega\rho$ από την επιφάνεια της πλασματικής νανοδομής.



Εικόνα 12: Φάσμα απορρόφησης [$Im[\chi^{(1)}]$ · συμπαγής καμπύλη] και φάσμα διασποράς [$Re[\chi^{(1)}]$ · διακεκομμένη καμπύλη] του κβαντικού συστήματος (α) $\phi = 0$, (β) $\phi = \pi/2$, (γ) $\phi = \pi$ και (δ) $\phi = 3\pi/2$.

Τα διαγράμματα αυτά προκύπτουν από την Εξ.21, κανονικοποιημένη σε μονάδες $\frac{N\mu'^2}{2\hbar\epsilon_0\Gamma_0}$. Πήραμε $\omega_{32} = 1,5\Gamma_0$, $\gamma' = 0,3\Gamma_0$, $\frac{Eb}{Ea} = 1,5$, $\bar{\omega} = 0,632\omega_p$, και $d = \frac{0,4c}{\omega_p}$ από τα οποία προέκυψε $\Gamma_{\perp} = 4,132\Gamma_0$ και $\Gamma_{\parallel} = 0,0031\Gamma_0$. Παρατηρούμε ότι το σχήμα των φασμάτων απορρόφησης και διασποράς επηρεάζεται έντονα από την αλλαγή της διαφοράς φάσης των δύο πεδίων. Επίσης, σε όλες τις περιπτώσεις, επιτυγχάνεται μηδενική απορρόφηση με μη μηδενική διασπορά και κέρδος χωρίς αναστροφή. Μάλιστα οι τιμές αποσυντονισμού για μηδενική απορρόφηση, οι οποίες καθορίζουν επίσης την περιοχή κέρδους χωρίς αναστροφή, αλλάζουν με την διαφορά φάσης, λόγω της εξάρτησης των δ_{\pm} από αυτή.

Τα διαγράμματα της Εικόνας 12 προέκυψαν κάνοντας χρήση του υπολογιστικού προγράμματος mathematica. Μάλιστα συγκρίναμε τις παραπάνω γραφικές παραστάσεις με τις αντίστοιχες καμπύλες της βιβλιογραφίας [90] όπως φαίνεται (για ενδεικτικές τιμές) στην Εικόνα 13.

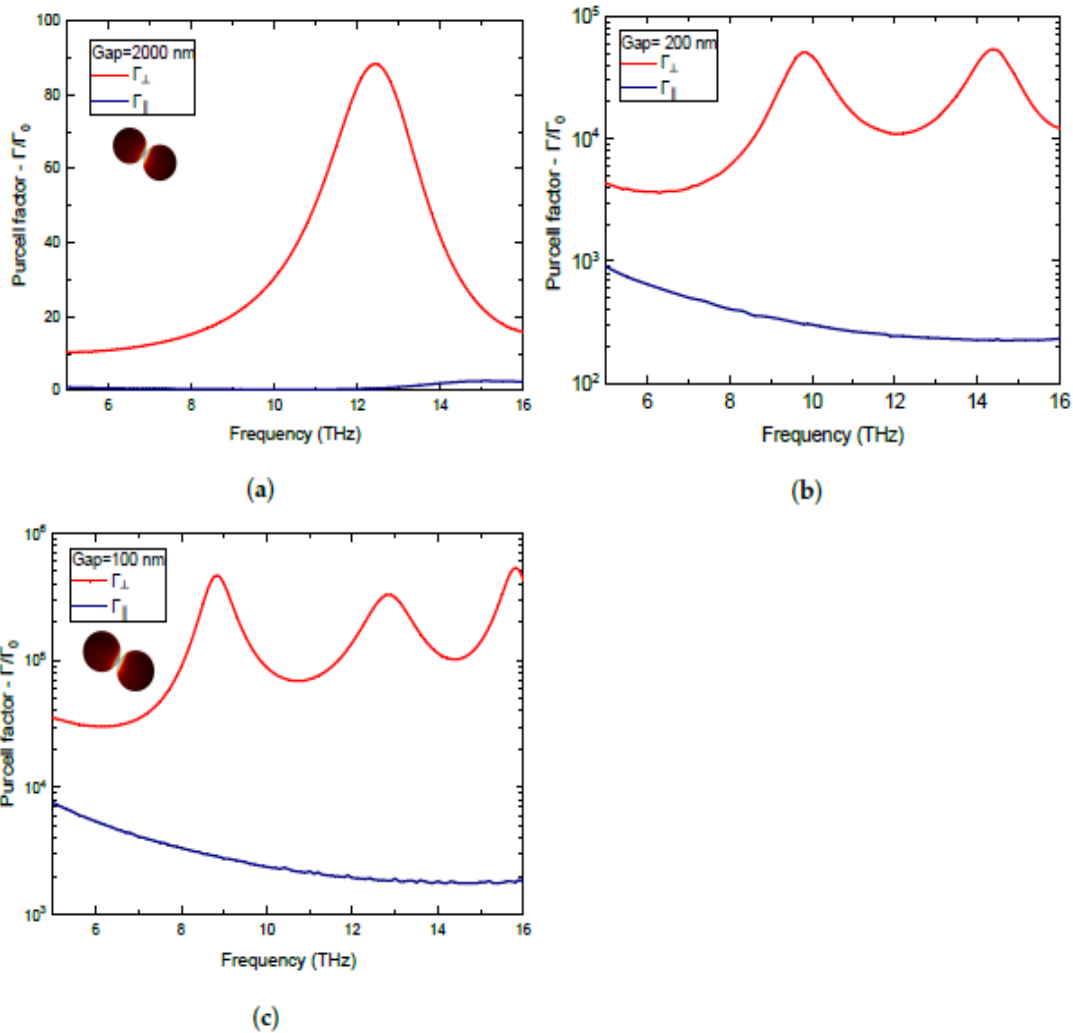


Εικόνα 13: Συγκριτική αναπαράσταση της καμπύλης $Re[\chi^{(1)}]$ για $\phi=0$, με την αντίστοιχη της βιβλιογραφίας (FIG.4 [90])

4.2 Διμερές Bi_2Te_3

Με δεδομένα λοιπόν αυτά τα πρώτα αποτελέσματα και τον αντίστοιχο φορμαλισμό όπως αυτός έχει αναπτυχθεί παραπάνω, μελετήθηκε στη συνέχεια η φασική εξάρτηση του $\chi^{(1)}$ για ένα τετρα-σταθμικό κβαντικό σύστημα, αυτή τη φορά υπό την παρουσία μικροδομών χαλκογενιδίων του βισμούθιου, και συγκεκριμένα Bi_2Te_3 , για διαφορετικά χάσματα.

Στην Εικόνα 14 [93], φαίνεται ο παράγοντας Purcell σε ένα διμερές μικροσφαιριδίων Bi_2Te_3 για αποστάσεις χάσματος 2000 nm, 200nm και 100 nm.



Εικόνα 14 [93]: Ο συντελεστής Purcell για ένα δίπολο το οποίο είναι κανονικά και εφαπτομενικά προσανατολισμένο σε σχέση με τις επιφάνειες 2 μικροσφαιριδίων Bi_2Te_3 , ως συνάρτηση της συχνότητας λειτουργίας EM του κβαντικού εκπομπού και της απόστασης χάσματος. α) Χάσμα = 2000 nm, (β) Χάσμα = 200 nm, (γ) Χάσμα = 100 nm,

Στα παραπάνω σχήματα παρατηρείται ότι ο συντελεστής Purcell αυξάνεται όταν η διπολική ροπή είναι κάθετη στις επιφάνειες των μικροσφαιριδίων, ενώ μειώνεται όταν η διπολική ροπή είναι παράλληλη με τις επιφάνειες. Η μεγαλύτερη διαφορά στους παράγοντες Purcell, για το χάσμα των 2000 nm, συμβαίνει για συχνότητα κοντά στα 12,4 THz, όπου λαμβάνει χώρα πολαριτονικός συντονισμός και οφείλεται στο γεγονός ότι ο αντίστοιχος φορέας πόλωσης του πολαριτονικού συντονισμού είναι σχεδόν ακτινικός [93].

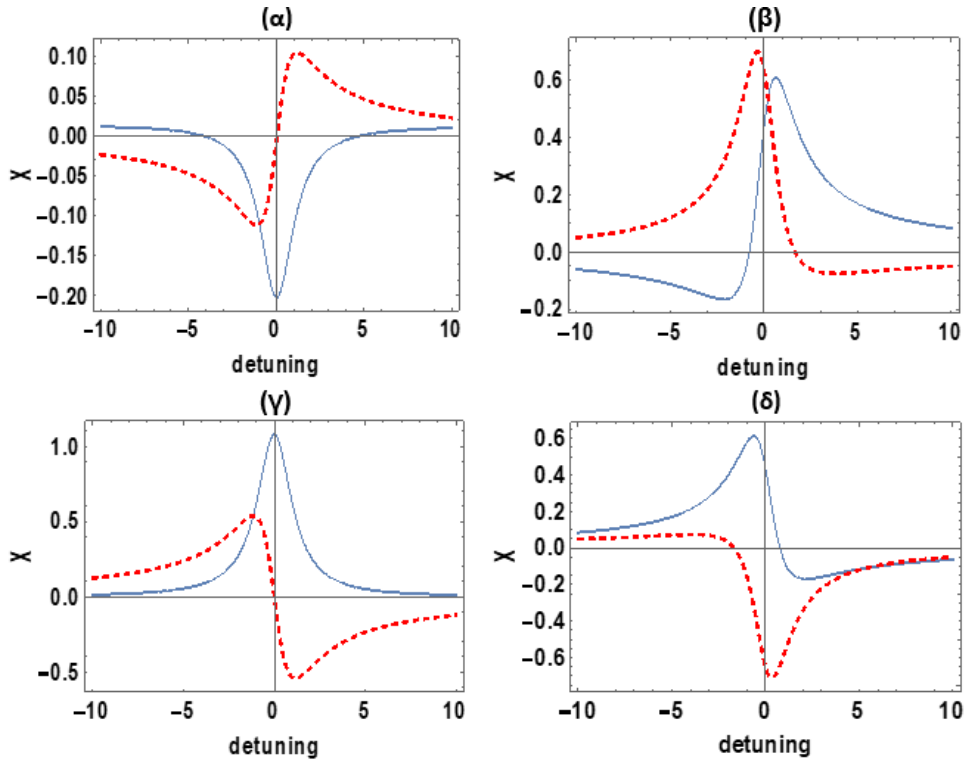
Για τα μικρότερα χάσματα, 200 nm και 100 nm, ο συντελεστής Purcell αυξάνεται ραγδαία. Αυτό οφείλεται στο γεγονός ότι, μεταξύ των μικροσφαιριδίων, υπάρχει ισχυρή σύζευξη [122]-[125] μεταξύ των καταστάσεων κενού και των καταστάσεων κβαντικού εκπομπού. Συγκεκριμένα, λόγω της παρουσίας των πολαριτονικών πεδίων στις επιφάνειες των μικροσφαιριδίων και λόγω της μείωσης του όγκου της κοιλότητας που δημιουργείται στο διάστημα μεταξύ των σφαιρών, τα φωτόνια αυθόρμητης εκπομπής δεν διαφεύγουν γρήγορα σε φωτονικές καταστάσεις έξω από

την κοιλότητα, ενισχύοντας έτσι την αλληλεπίδραση μεταξύ των καταστάσεων εκπομπής με τις πολαριτικές καταστάσεις των μικροσφαιριδίων.

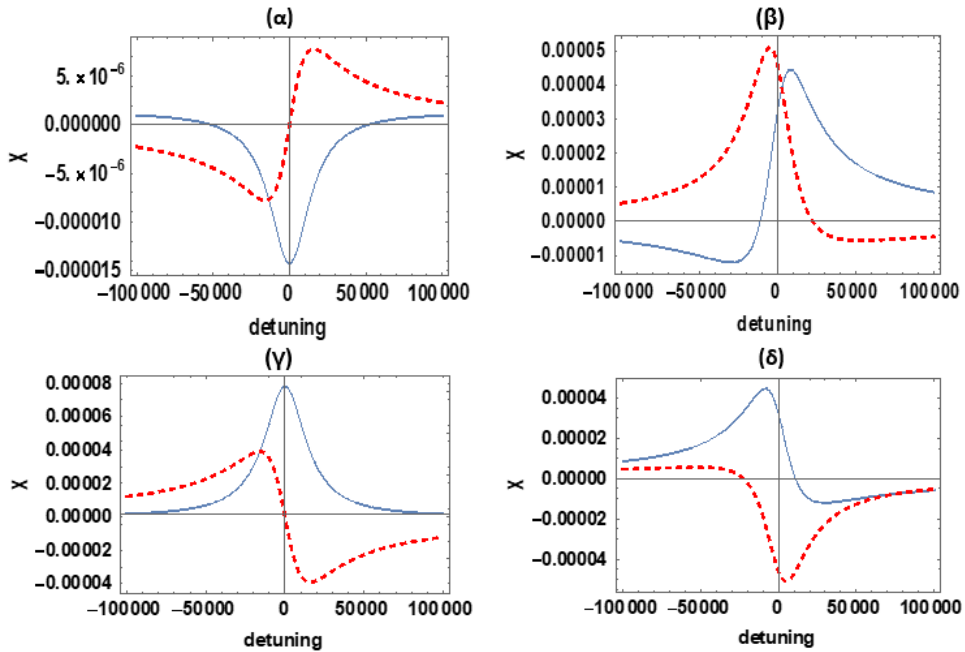
Μειώνοντας το χάσμα μεταξύ των μικροσφαιριδίων, περνάμε από την ασθενή σύζευξη σε ένα ισχυρό καθεστώς σύζευξης μεταξύ του κβαντικού εκπομπού και του φωτονικού περιβάλλοντος. Ταυτόχρονα, ο αριθμός των ΗΜ καταστάσεων μέσα στο χάσμα που αλληλεπιδρούν με τον κβαντικό εκπομπό αυξάνεται, γεγονός που έχει ως αποτέλεσμα την αύξηση του αριθμού των κορυφών στα φάσματα των ρυθμών αποδιέγερσης. Σημειώνεται επίσης ότι ο λόγος για την εμφάνιση τόσο υψηλών τιμών των παραγόντων Purcell, για όλα τα μεγέθη χάσματος, είναι το χαμηλός ποσοστό ωμικών απωλειών. Τα διχαλκογενίδια του βισμούθιου απορροφούν ένα ελάχιστο ποσοστό προσπίπτουσας ακτινοβολίας (ανακλαστικές επιφάνειες) καθώς η διηλεκτρική τους συνάρτηση λαμβάνει τεράστιες τιμές στην περιοχή THz, αυξάνοντας έτσι την πιθανότητα η σκεδαζόμενη ακτινοβολία να επιστρέψει στην περιοχή του κβαντικού εκπομπού επηρεάζοντας το ρυθμό αποδιέγερσης του.

Σύμφωνα με την Εξ.15, η κβαντική συμβολή αναμένεται να ενισχυθεί κοντά σε συχνότητες όπου υπάρχει μέγιστη μείωση του ρυθμού διέγερσης Γ_{\parallel} και μάλιστα ο βαθμός κβαντικής συμβολής έχει πολύ υψηλές τιμές για μια πληθώρα συχνοτήτων. Ο βαθμός κβαντικής συμβολής προσεγγίζει τη μέγιστη τιμή ($\rho \rightarrow 1$) για ένα ευρύ φάσμα συχνοτήτων και αποστάσεων μεταξύ των μικροσφαιριδίων. Ειδικά για το μεγάλο χάσμα με μέγεθος 2000 nm, ο βαθμός κβαντικής συμβολής παίρνει μια μέγιστη τιμή $\rho = 0,990$ στα 11,6 THz. Για τα μικρότερα κενά των 200 nm και 100 nm, ο βαθμός κβαντικής συμβολής στη μεγαλύτερη περιοχή συχνοτήτων παίρνει πολύ υψηλές τιμές που κυμαίνονται μεταξύ $\rho = 0,94$ και μέγιστης τιμής $\rho = 0,993$.

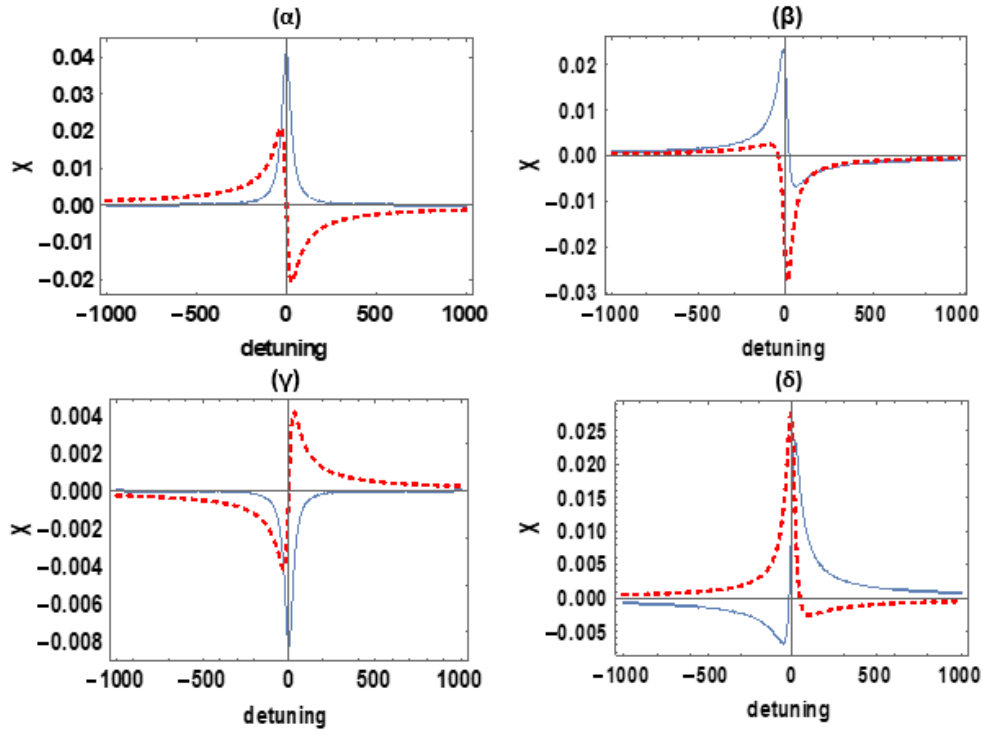
Όλα τα παραπάνω έχουν σημαντικές επιπτώσεις στα φάσματα απορρόφησης και διασποράς. Στις Εικόνες 15-17 παρουσιάζουμε παραδείγματα φασμάτων απορρόφησης και διασποράς για διαφορετικές φάσεις ϕ και για $E_b/E_a = 1,5$ για τα αντίστοιχα χάσματα μεταξύ των μικροδομών χαλκογενιδίου. Βλέπουμε ότι το σχήμα των φασμάτων απορρόφησης και διασποράς επηρεάζεται έντονα από την αλλαγή των ϕ , ενώ ενδιαφέρον παρουσιάζει η παρουσία διαφάνειας και κέρδους (αρνητική απορρόφηση).



Εικόνα 15: Φάσμα απορρόφησης [$Im(\chi^{(1)})$: συμπαγής καμπύλη] και φάσμα διασποράς [$Re(\chi^{(1)})$: διακεκομμένη καμπύλη] του κβαντικού συστήματος υπό την παρουσία μικροδομών Bi_2Te_3 για χάσμα 2000nm. Τα διαγράμματα αυτά προκύπτουν από την Εξ.21 κανονικοποιημένη σε μονάδες $N\mu^2/2\hbar\epsilon_0\Gamma_0$. Πήραμε $\omega_{32} = 1,5\Gamma_0$, $\gamma' = 0,3\Gamma_0$, $E_b/E_a = 1,5$, $\bar{\omega} = 0,632\omega_p$. Από το διάγραμμα της Εικόνας 14(α) και για συχνότητα $f = 12,4259$ THz (όπου και ισχυροποιείται το φαινόμενο κβαντικής συμβολής) προέκυψε $\Gamma_{\perp} = 88,5106\Gamma_0$ και $\Gamma_{\parallel} = 0,851064\Gamma_0$. (α) $\varphi = 0$, (β) $\varphi = \pi/2$, (γ) $\varphi = \pi$ και (δ) $\varphi = 3\pi/2$.



Εικόνα 16: Φάσμα απορρόφησης [$Im(\chi^{(1)})$: συμπαγής καμπύλη] και φάσμα διασποράς [$Re(\chi^{(1)})$: διακεκομμένη καμπύλη] του κβαντικού συστήματος υπό την παρουσία μικροδομών Bi_2Te_3 για χάσμα 200nm. Τα διαγράμματα αυτά προκύπτουν από την Εξ.21 κανονικοποιημένη σε μονάδες $N\mu^2/2\hbar\epsilon_0\Gamma_0$. Πήραμε $\omega_{32} = 1,5\Gamma_0$, $\gamma' = 0,3\Gamma_0$, $E_b/E_a = 1,5$, $\bar{\omega} = 0,632\omega_p$. Από το διάγραμμα της Εικόνας 14(γ) και για συχνότητα $f = 9,81$ THz προέκυψε $\Gamma_{\perp} = 905067,4\Gamma_0$ και $\Gamma_{\parallel} = 15963,9\Gamma_0$. (α) $\varphi = 0$, (β) $\varphi = \pi/2$, (γ) $\varphi = \pi$ και (δ) $\varphi = 3\pi/2$.



Εικόνα 17: Φάσμα απορρόφησης $[Im(\chi^{(1)})$ · συμπαγής καμπύλη] και φάσμα διασποράς $[Re(\chi^{(1)})$ · διακεκομμένη καμπύλη] του κβαντικού συστήματος υπό την παρουσία μικροδομών Bi_2Te_3 για χάσμα 100nm. Τα διαγράμματα αυτά προκύπτουν από την Εξ.21 κανονικοποιημένη σε μονάδες $N\mu^2/2\hbar\epsilon_0\Gamma_0$. Πήραμε $\omega_{32} = 1,5\Gamma_0$, $\gamma' = 0,3\Gamma_0$, $E_b/E_a = 1,5$, $\bar{\omega} = 0,632\omega_p$. Από το διάγραμμα της Εικόνας 14(γ) και για συχνότητα $f = 15,7975$ THz προέκυψε $\Gamma_{\perp} = 9,09 \cdot 10^5\Gamma_0$ και $\Gamma_{\parallel} = 87690,1\Gamma_0$. (α) $\varphi = 0$, (β) $\varphi = \pi/2$, (γ) $\varphi = \pi$ και (δ) $\varphi = 3\pi/2$.

Έχει μια σημασία σε αυτό το σημείο να δούμε κατά πόσο επαληθεύονται οι συνθήκες των Εξ.26-36 με την υπολογιστική ανάλυση που έχουμε κάνει και τα αντίστοιχα διαγράμματα που έχουν προκύψει.

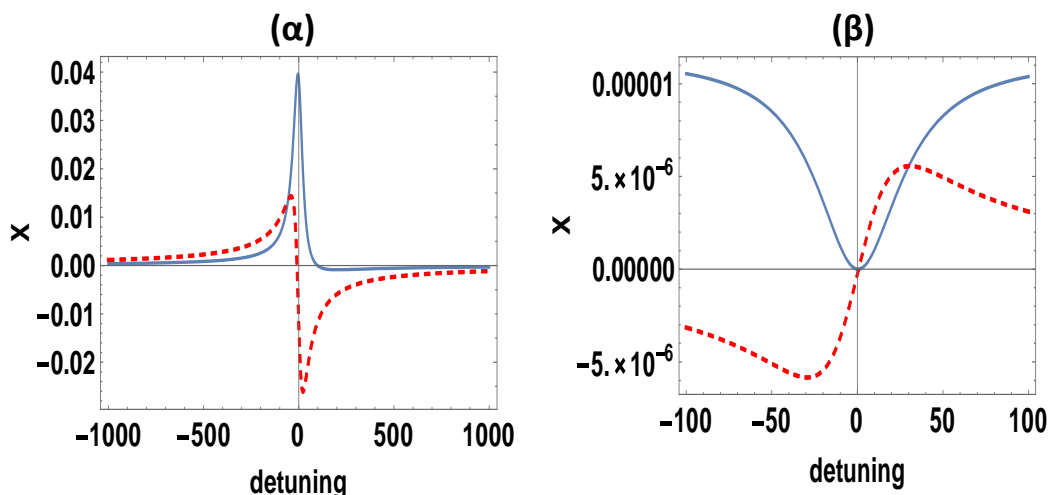
Αρχικά, όσον αφορά τις συνθήκες για μηδενική απορρόφηση με μη μηδενική διασπορά μπορούμε να δούμε τα εξής: Στην περίπτωση του διμερούς Bi_2Te_3 και για χάσμα 100nm βλέπουμε τα αποτελέσματα της Εξ.26 να επαληθεύονται. Συγκεκριμένα, για διαφορά φάσης $\varphi=0$ οι τιμές του δ για τις οποίες θα αναμέναμε να προκύπτει μηδενική απορρόφηση με μη μηδενική διασπορά είναι $\delta=\pm 3631$ κάτι το οποίο επιβεβαιώνεται από τον ασυμπτωματικό μηδενισμό της καμπύλης του $Im[\chi^{(1)}(\delta)]$ σε τόσο μεγάλες τιμές του detuning. Για διαφορά φάσης $\varphi=\pi/2$ από την Εξ.26 προκύπτει ότι $\delta=20,058$, ενώ αν δούμε το σημείο μηδενισμού της καμπύλης του $Im[\chi^{(1)}(\delta)]$ θα δούμε ότι αυτό προκύπτει για $\delta=21,7391$. Για διαφορά φάσης $\varphi=\pi$ από την Εξ.26 προκύπτει ότι $\delta=\pm 3631$, κάτι το οποίο επίσης επιβεβαιώνεται από τον ασυμπτωματικό μηδενισμό της καμπύλης του $Im[\chi^{(1)}(\delta)]$ για αυτές τις τιμές του detuning. Τέλος, για διαφορά φάσης $\varphi=3\pi/2$ από την Εξ.26 προκύπτει ότι $\delta=-20,0162$ ενώ αν δούμε το σημείο μηδενισμού της καμπύλης του $Im[\chi^{(1)}(\delta)]$ θα δούμε ότι αυτό προκύπτει για $\delta=-19,27$.

Στην περίπτωση του διμερούς Bi_2Te_3 και για χάσμα 200nm βλέπουμε επίσης τα αποτελέσματα της Εξ.26 να επαληθεύονται. Συγκεκριμένα για διαφορά φάσης $\varphi=0$ οι τιμές του δ για τις οποίες θα αναμέναμε να προκύπτει μηδενική απορρόφηση με

μη μηδενική διασπορά είναι $\delta=\pm 5142,6$ κάτι το οποίο επιβεβαιώνεται από τον μηδενισμό της καμπύλης του $\text{Im}[\chi^{(1)}(\delta)]$ για $\delta=\pm 4933$. Για διαφορά φάσης $\phi=\pi/2$ από την Εξ.26 προκύπτει ότι $\delta=-10923$ ενώ αν δούμε το σημείο μηδενισμού της καμπύλης του $\text{Im}[\chi^{(1)}(\delta)]$ θα δούμε ότι αυτό προκύπτει για $\delta=-10299$. Για διαφορά φάσης $\phi=\pi$ τα αποτελέσματα της Εξ.26 επιβεβαιώνονται από τον ασυμπτωματικό μηδενισμό της καμπύλης του $\text{Im}[\chi^{(1)}(\delta)]$ για τις αντίστοιχες τιμές του detuning. Τέλος, για διαφορά φάσης $\phi=3\pi/2$ από την Εξ.26 προκύπτει ότι $\delta=10923,4$, ενώ αν δούμε το σημείο μηδενισμού της καμπύλης του $\text{Im}[\chi^{(1)}(\delta)]$ θα δούμε ότι αυτό προκύπτει για $\delta=10508,5$.

Τέλος, αντίστοιχα ευρύματα θα έχουμε και στην περίπτωση του διμερούς Bi_2Te_3 για χάσμα 2000nm. Συγκεκριμένα για διαφορά φάσης $\phi=0$ οι τιμές του δ για τις οποίες θα αναμέναμε να προκύπτει μηδενική απορρόφηση με μη μηδενική διασπορά είναι $\delta=-4,096$ και $\delta=4,705$ κάτι το οποίο επιβεβαιώνεται από τον μηδενισμό της καμπύλης του $\text{Im}[\chi^{(1)}(\delta)]$ για $\delta=-4,084$ και $\delta=4,701$. Για διαφορά φάσης $\phi=\pi/2$ από την Εξ.26 προκύπτει ότι $\delta=-0,7956$ ενώ αν δούμε το σημείο μηδενισμού της καμπύλης του $\text{Im}[\chi^{(1)}(\delta)]$ θα δούμε ότι αυτό προκύπτει για $\delta=-0,782$. Για διαφορά φάσης $\phi=\pi$ τα αποτελέσματα της Εξ.26 επιβεβαιώνονται από τον ασυμπτωματικό μηδενισμό της καμπύλης του $\text{Im}[\chi^{(1)}(\delta)]$ για τις αντίστοιχες τιμές του detuning. Τέλος, για διαφορά φάσης $\phi=3\pi/2$ από την Εξ.26 προκύπτει ότι $\delta=0,777$, ενώ αν δούμε το σημείο μηδενισμού της καμπύλης του $\text{Im}[\chi^{(1)}(\delta)]$ θα δούμε ότι αυτό προκύπτει για $\delta=0,773$.

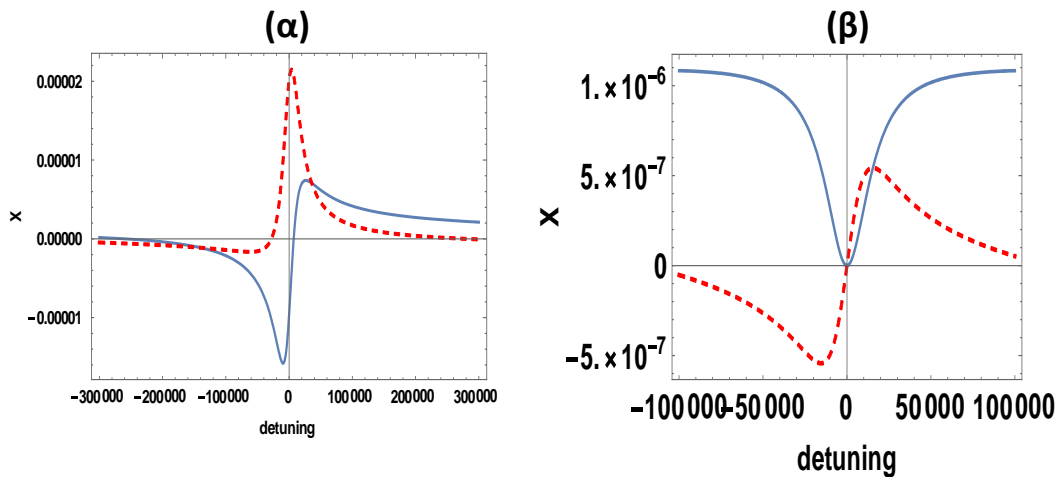
Για τη περίπτωση της πλήρους οπτικής διαφάνειας μπορούμε να δούμε ότι αυτή παρουσιάζεται σε δύο περιπτώσεις, τόσο όταν επαληθεύονται οι Εξ.30-32 όσο και όταν επαληθεύονται οι Εξ.33,34.



Εικόνα 18: Εμφάνιση πλήρους οπτικής διαφάνειας στη περίπτωση του διμερούς Bi_2Te_3 και για χάσμα 100nm (α) όταν εφαρμόζονται οι Εξ.30-32 (β) όταν εφαρμόζονται οι Εξ.33,34

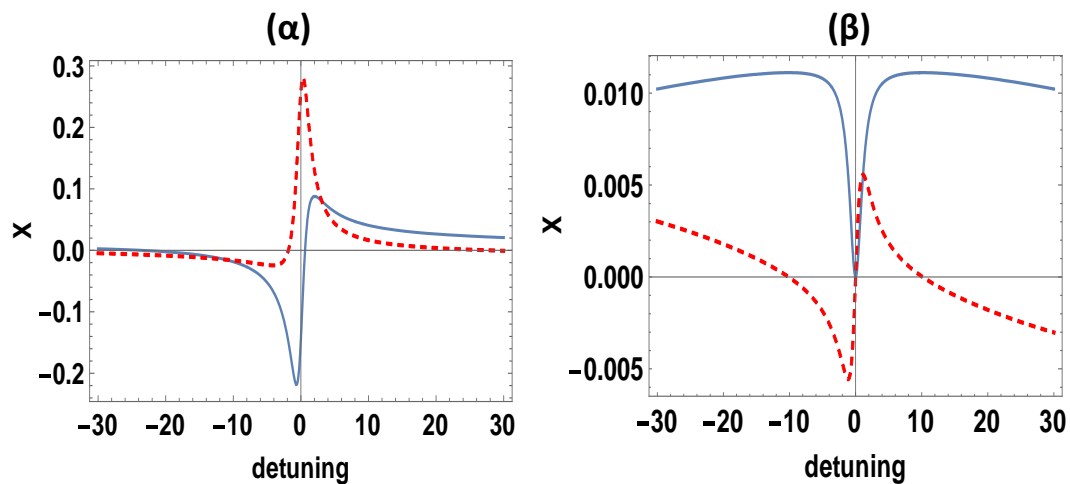
Αρχικά, στην περίπτωση του διμερούς Bi_2Te_3 και για χάσμα 100nm (Εικόνα 18) βλέπουμε ότι πλήρης οπτική διαφάνεια παρουσιάζεται για την τιμή αποσυντονισμού $\delta= -30949,4$ και διαφοράς φάσης $\phi= 0.490125$. Μάλιστα, στην

περίπτωση όπου $E_b/E_a = -1,00068$ και $\phi = 0,0000170998$ επαληθεύεται η εμφάνιση πλήρους οπτικής διαφάνειας για $\delta=0$.



Εικόνα 19: Εμφάνιση πλήρους οπτικής διαφάνειας στη περίπτωση του διμερούς Bi_2Te_3 και για χάσμα 200nm (α) όταν εφαρμόζονται οι Εξ.30-32 (β) όταν εφαρμόζονται οι Εξ.33,34

Στη περίπτωση του διμερούς Bi_2Te_3 και για χάσμα 200nm (Εικόνα 19) βλέπουμε ότι πλήρης οπτική διαφάνεια παρουσιάζεται για την τιμή αποσυντονισμού $\delta = -29045$ και διαφοράς φάσης $\phi = 0,450678$. Επιπλέον στη περίπτωση όπου $E_b/E_a = 1,03591$ και $\phi = 0,0166723$ επαληθεύεται η εμφάνιση πλήρους οπτικής διαφάνειας για $\delta=0$.



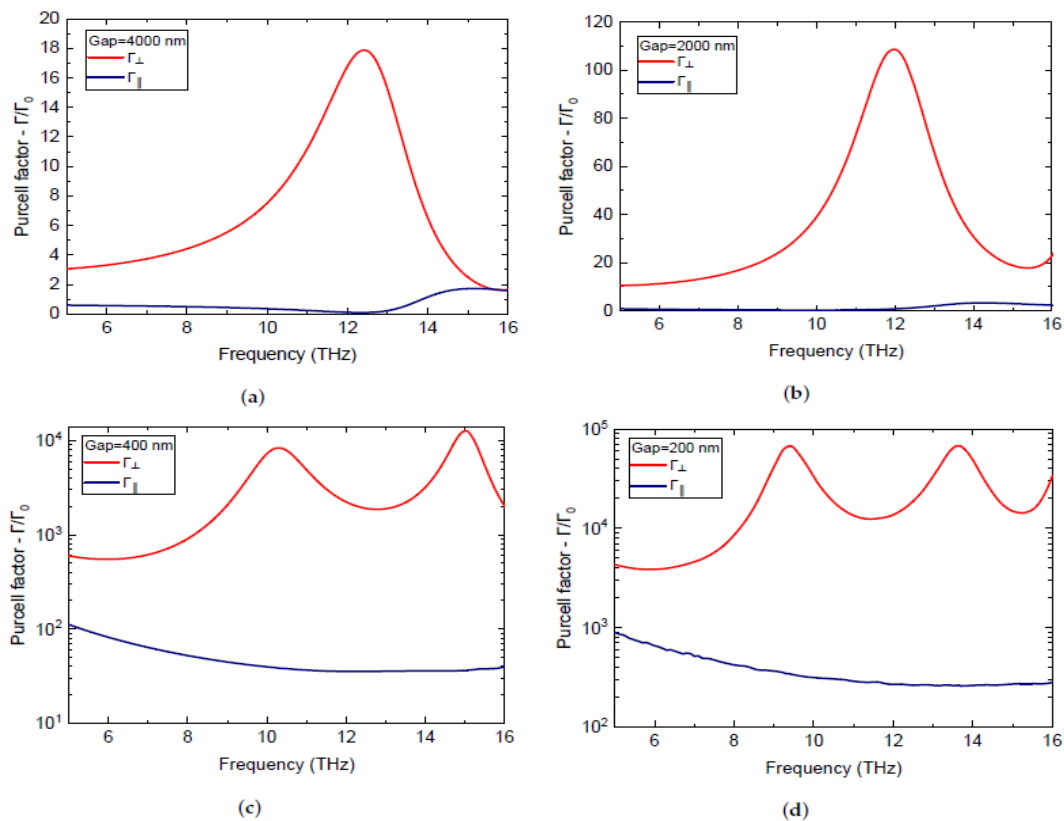
Εικόνα 20: Εμφάνιση πλήρους οπτικής διαφάνειας στη περίπτωση του διμερούς Bi_2Te_3 και για χάσμα 2000nm (α) όταν εφαρμόζονται οι Εξ.30-32 (β) όταν εφαρμόζονται οι Εξ.33,34

Αντίστοιχα στη περίπτωση του διμερούς Bi_2Te_3 και για χάσμα 2000nm (Εικόνα 20) βλέπουμε ότι πλήρης οπτική διαφάνεια παρουσιάζεται για την τιμή αποσυντονισμού $\delta = -47,1988$ και διαφοράς φάσης $\phi = 0.0166723$. Επιπλέον στη περίπτωση όπου $E_b/E_a = 1,0264$ και $\phi = 0,0166723$ επαληθεύεται η εμφάνιση πλήρους οπτικής διαφάνειας για $\delta = 0$.

Τέλος, αξίζει να αναφερθεί και η παρουσία κέρδους χωρίς αναστροφή που παρατηρείται για παράδειγμα στις Εικόνες 15(β),(δ) , 16(β),(δ) , 17(β),(δ).

4.3 Διμερές Bi_2Se_3

Στη συνέχεια και με αντίστοιχο τρόπο, μελετήθηκε η φασική εξάρτηση του $\chi^{(1)}$ για ένα τετρα-σταθμικό κβαντικό σύστημα, υπό την παρουσία δύο μικροδομών Bi_2Se_3 , για διαφορετικά χάσματα. Στην Εικόνα 21 [93] , φαίνεται ο παράγοντας Purcell σε ένα διμερές μικροσφαιριδίων Bi_2Te_3 για αποστάσεις χάσματος 4000nm, 2000 nm, 400nm, 200nm και 100 nm.



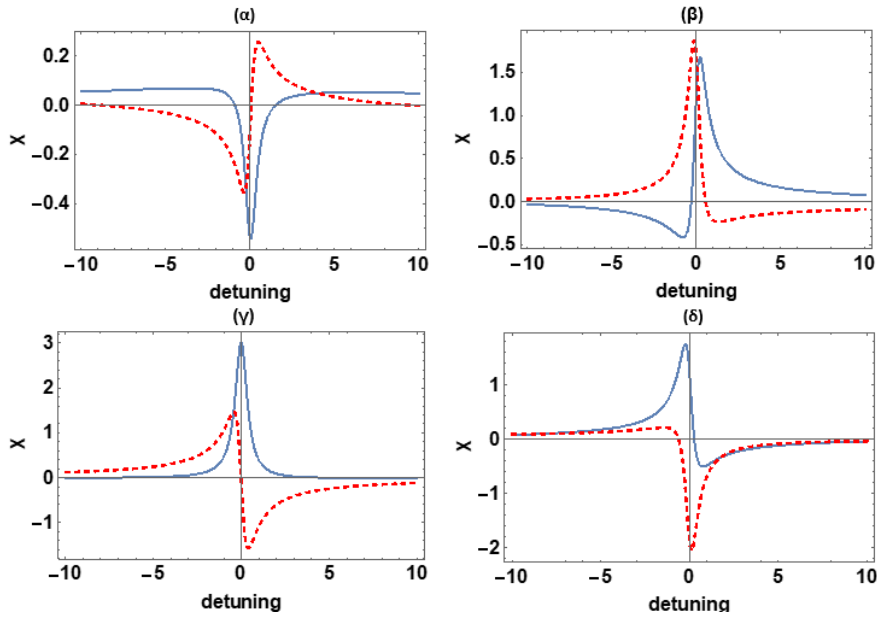
Εικόνα 21 [93]: Ο συντελεστής Purcell για ένα δίπολο το οποίο είναι κανονικά και εφαπτομενικά προσανατολισμένο σε σχέση με τις επιφάνειες 2 μικροσφαιριδίων Bi_2Se_3 , ως συνάρτηση της συχνότητας λειτουργίας EM του κβαντικού εκπομπού και της απόστασης χάσματος. (a) Χάσμα = 4000 nm, (b) Χάσμα = 2000 nm, (c) Χάσμα = 400 nm, (d) 200nm,

Ο παράγοντας Purcell, όπως και στην περίπτωση των μικροσφαιριδίων Bi_2Te_3 , αυξάνεται για διπολικές ροπές με κατεύθυνση κάθετη στις επιφάνειες των

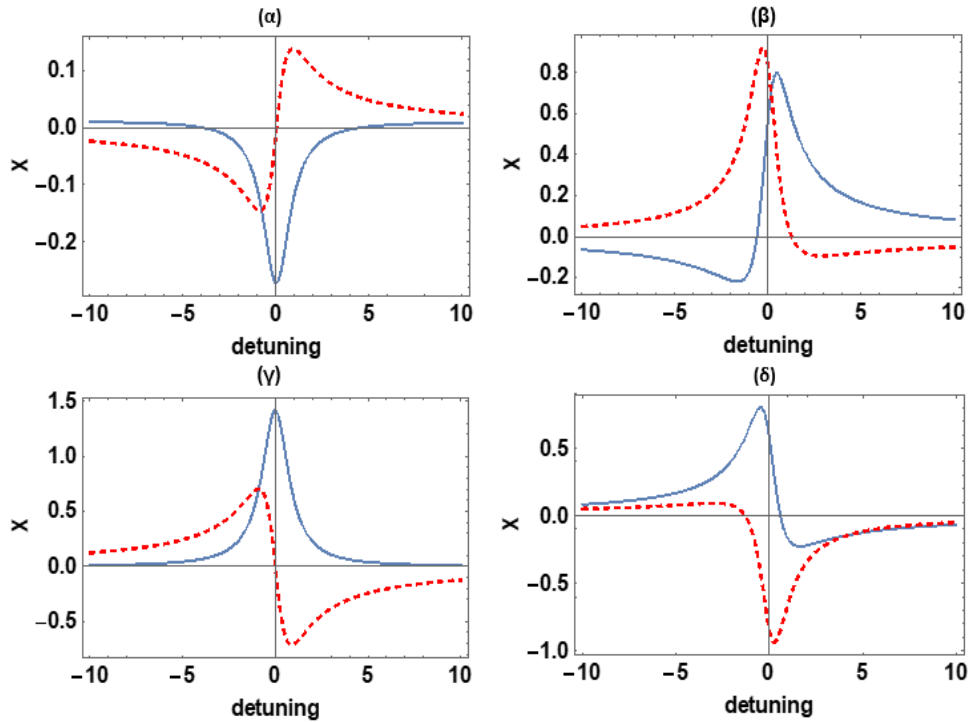
μικροσφαιριδίων, ενώ για διπολικές ροπές παράλληλες με τις επιφάνειες των μικροσφαιριδίων, ο παράγοντας Purcell μειώνεται. Οι πολαριτονικοί συντονισμοί μετατοπίζονται προς χαμηλότερες συχνότητες σε σύγκριση με το διμερές σύστημα Bi_2Te_3 , επειδή η μεγιστοποίηση της διαφοράς μεταξύ των ρυθμών διάσπασης $\Gamma_{\perp}, \Gamma_{\parallel}$ συμβαίνει για συχνότητες κοντά στα 12 THz ενώ ο ρυθμός διάσπασης Γ_{\parallel} του κβαντικού εκπομπού είναι πολύ πιο μειωμένος. Συγκεκριμένα, σε συχνότητες 12,4 THz, 11,2 THz, οι παράγοντες Purcell $\Gamma_{\parallel}/\Gamma_0$ λαμβάνουν τις τιμές $F_p = 0,098$, $F_p = 0,440$, για τα κενά 4000 nm, 2000 nm, αντίστοιχα. Τα μικροσωματίδια σεληνίου βισμούθιου και τα μικροσωματίδια τελλουριούχου βισμούθιου έχουν παρόμοιο εύρος ρυθμών αυθόρμητης εκπομπής. Ωστόσο, όπως μπορούμε να παρατηρήσουμε από την Εικόνα 21 για το διμερές σύστημα σεληνίου βισμούθιου, παρατηρούμε υψηλότερους παράγοντες Purcell λόγω ελαφρώς ισχυρότερων πολαριτονικών συντονισμών, οι οποίοι μετατοπίζονται σε χαμηλότερες συχνότητες. Μάλιστα ο βαθμός κβαντικής συμβολής στο διμερές του Bi_2Se_3 υποθέτει υψηλότερες τιμές από το Bi_2Te_3 , που είναι τέτοιες για ένα ευρύ φάσμα αποστάσεων και συχνοτήτων. Συγκεκριμένα, για κενά μεγέθους 4000 nm και 2000 nm, ο βαθμός κβαντικής συμβολής παίρνει μέγιστη τιμή $\rho = 0,989$ στα 12,4 THz και $\rho = 0,989$ στα 11,2 THz, αντίστοιχα. Για μικρά χάσματα με διαστάσεις 400 nm, 200 nm και 100 nm, ο βαθμός κβαντικής συμβολής στη μεγαλύτερη περιοχή συχνοτήτων προϋποθέτει πολύ υψηλές τιμές που κυμαίνονται από $\rho = 0,94$ έως μέγιστη τιμή ελαφρώς μεγαλύτερη από $\rho = 0,994$. [93]

Η εμφάνιση τέτοιων υψηλών βαθμών κβαντικής συμβολής αποδίδεται στο γεγονός ότι το ποσοστό των ωμικών απωλειών (απώλειες θερμότητας) στην περίπτωση της ακτινικής διπολικής ροπής είναι ελάχιστο, γεγονός που ενισχύει τις διαθέσιμες καταστάσεις κενού στον ελεύθερο χώρο, αυξάνοντας με αυτόν τον τρόπο τις διαθέσιμες φωτονικές καταστάσεις για τον κβαντικό εκπομπό. Αντίθετα, στην περίπτωση εφαπτόμενων διπολικών ροπών, ο ρυθμός των ωμικών απωλειών αυξάνεται και η ηλεκτρομαγνητική ακτινοβολία καταλήγει σε απώλειες θερμότητας.

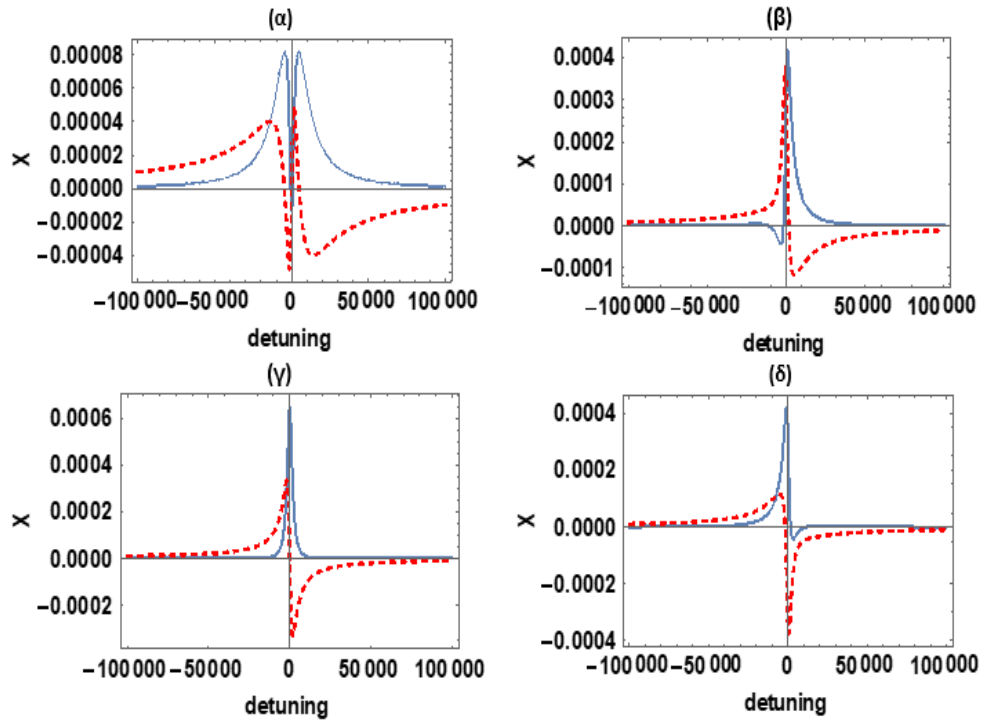
Στις Εικόνες 22-26 παρουσιάζουμε παραδείγματα φασμάτων απορρόφησης και διασποράς για διαφορετικές φάσεις ϕ και για $E_b/E_a = 1,5$ για τα αντίστοιχα χάσματα μεταξύ των μικροδομών χαλκογενιδίου. Παρατηρούμε και εδώ ότι το σχήμα των φασμάτων απορρόφησης και διασποράς επηρεάζεται έντονα από την αλλαγή των ϕ , ενώ αντίστοιχα εμφανίζεται πλήρης οπτική διαφάνεια και κέρδος χωρίς αναστροφή.



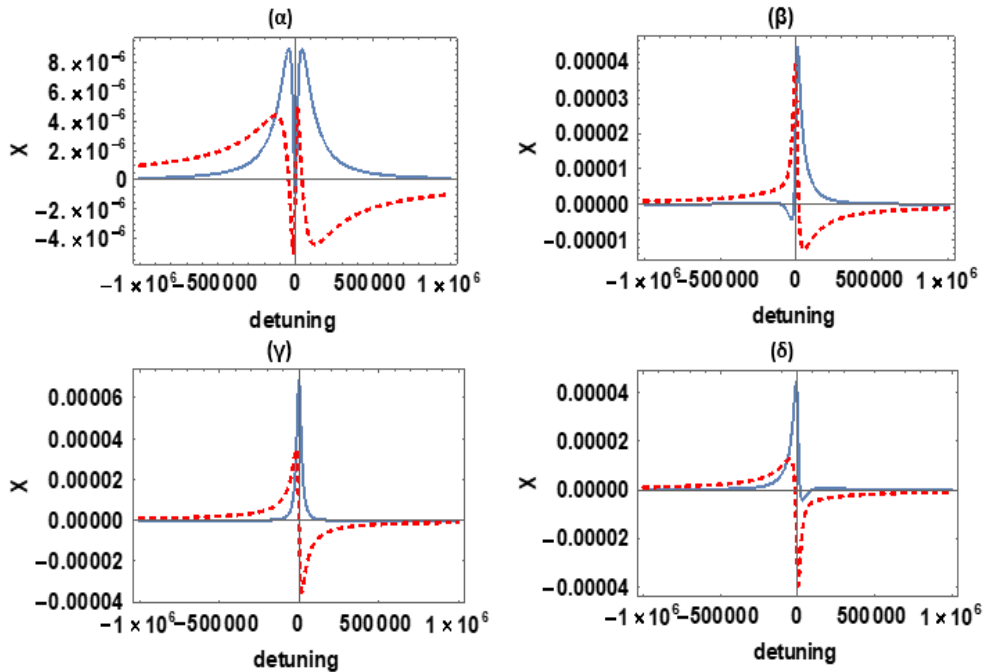
Εικόνα 22: Φάσμα απορρόφησης [$Im(\chi^{(1)})$: συμπαγής καμπύλη] και φάσμα διασποράς [$Re(\chi^{(1)})$: διακεκομμένη καμπύλη] του κβαντικού συστήματος υπό την παρουσία μικροδομών Bi_2Se_3 για χάσμα 4000nm. Τα διαγράμματα αυτά προκύπτουν από την Εξ.21, κανονικοποιημένη σε μονάδες $N\mu^2/2\hbar\epsilon_0\Gamma_0$. Πήραμε $\omega_{32} = 1,5\Gamma_0$, $\gamma' = 0,3\Gamma_0$, $E_b/E_a = 1,5$, $\bar{\omega} = 0,632\omega_p$. Από το διάγραμμα της Εικόνας 21(a) και για συχνότητα $f = 14,1$ THz προέκυψε $\Gamma_{\perp} = 17,9253\Gamma_0$ και $\Gamma_{\parallel} = 0,0829876,1\Gamma_0$. (α) $\varphi = 0$, (β) $\varphi = \pi/2$, (γ) $\varphi = \pi$ και (δ) $\varphi = 3\pi/2$.



Εικόνα 23: Φάσμα απορρόφησης [$Im(\chi^{(1)})$: συμπαγής καμπύλη] και φάσμα διασποράς [$Re(\chi^{(1)})$: διακεκομμένη καμπύλη] του κβαντικού συστήματος υπό την παρουσία μικροδομών Bi_2Se_3 για χάσμα 2000nm. Τα διαγράμματα αυτά προκύπτουν από την Εξ.21 κανονικοποιημένη σε μονάδες $N\mu^2/2\hbar\epsilon_0\Gamma_0$. Πήραμε $\omega_{32} = 1,5\Gamma_0$, $\gamma' = 0,3\Gamma_0$, $E_b/E_a = 1,5$, $\bar{\omega} = 0,632\omega_p$. Από το διάγραμμα της Εικόνας 21(a) και για συχνότητα $f = 11,9$ THz προέκυψε $\Gamma_{\perp} = 108,462\Gamma_0$ και $\Gamma_{\parallel} = 0,576923,1\Gamma_0$. (α) $\varphi = 0$, (β) $\varphi = \pi/2$, (γ) $\varphi = \pi$ και (δ) $\varphi = 3\pi/2$.



Εικόνα 24: Φάσμα απορρόφησης [$Im(\chi^{(1)})$ · συμπαγής καμπύλη] και φάσμα διασποράς [$Re(\chi^{(1)})$ · διακεκομμένη καμπύλη] του κβαντικού συστήματος υπό την παρουσία μικροδομών Bi_2Se_3 για χάρσα 400nm. Τα διαγράμματα αυτά προκύπτουν από την Εξ.21, κανονικοποιημένη σε μονάδες $N\mu^2/2\hbar\epsilon_0\Gamma_0$. Πήραμε $\omega_{32} = 1,5\Gamma_0$, $\gamma' = 0,3\Gamma_0$, $E_b/E_a = 1,5$, $\bar{\omega} = 0,632\omega_p$. Από το διάγραμμα της Εικόνας 21(c) και για συχνότητα $f = 15$ THz προέκυψε $\Gamma_{\perp} = 10352,1\Gamma_0$ και $\Gamma_{\parallel} = 1858,37\Gamma_0$. (α) $\varphi = 0$, (β) $\varphi = \pi/2$, (γ) $\varphi = \pi$ και (δ) $\varphi = 3\pi/2$.



Εικόνα 25: Φάσμα απορρόφησης [$Im(\chi^{(1)})$ · συμπαγής καμπύλη] και φάσμα διασποράς [$Re(\chi^{(1)})$ · διακεκομμένη καμπύλη] του κβαντικού συστήματος υπό την παρουσία μικροδομών Bi_2Se_3 για χάρσα 200nm. Τα διαγράμματα αυτά προκύπτουν από την Εξ.21, κανονικοποιημένη σε μονάδες $N\mu^2/2\hbar\epsilon_0\Gamma_0$. Πήραμε $\omega_{32} = 1,5\Gamma_0$, $\gamma' = 0,3\Gamma_0$, $E_b/E_a = 1,5$, $\bar{\omega} = 0,632\omega_p$. Από το διάγραμμα της Εικόνας 21(d) και για συχνότητα $f = 9,44099$ THz προέκυψε $\Gamma_{\perp} = 94566,1\Gamma_0$ και $\Gamma_{\parallel} = 17655,6\Gamma_0$. (α) $\varphi = 0$, (β) $\varphi = \pi/2$, (γ) $\varphi = \pi$ και (δ) $\varphi = 3\pi/2$.

Όπως και στην περίπτωση του Bi_2Te_3 έτσι και εδώ θα ελέγξουμε κατά πόσο επαληθεύονται οι συνθήκες των Εξ.26-36 με την υπολογιστική ανάλυση που έχουμε κάνει και τα αντίστοιχα διαγράμματα που έχουν προκύψει.

Αρχικά, όσον αφορά τις συνθήκες για μηδενική απορρόφηση με μη μηδενική διασπορά, παρατηρούμε τα παρακάτω: Στην περίπτωση του διμερούς Bi_2Se_3 και για χάσμα 4000nm βλέπουμε τα αποτελέσματα της Εξ.26 να επαληθεύονται. Συγκεκριμένα, για διαφορά φάσης $\phi = 0$ οι τιμές του δ για τις οποίες θα αναμέναμε να προκύπτει μηδενική απορρόφηση με μη μηδενική διασπορά είναι $\delta = -0,89$ και $\delta = 1,51$, κάτι το οποίο επιβεβαιώνεται από τον μηδενισμό της καμπύλης του $\text{Im}[\chi^{(1)}(\delta)]$ σε τιμές $\delta = -0,87$ και $\delta = 1,52$. Για διαφορά φάσης $\phi = \pi/2$ από την Εξ.26 προκύπτει ότι $\delta = -0,30$ ενώ αν δούμε το σημείο μηδενισμού της καμπύλης του $\text{Im}[\chi^{(1)}(\delta)]$ θα δούμε ότι αυτό προκύπτει για $\delta = -0,29$. Για τη συγκεκριμένη διαφορά φάσης θα δούμε ότι από την Εξ.26 προκύπτει $\delta = -0,30$, ενώ αν παρατηρήσουμε τη καμπύλη του $\text{Im}[\chi^{(1)}(\delta)]$ θα δούμε ότι ασυμπτωματικά μηδενίζεται για τιμές του $\delta = -0,29$ και αλγεβρικά μικρότερες. Για διαφορά φάσης $\phi = \pi$ από την Εξ.26 προκύπτει ότι $\delta = -8,41$ και $\delta = 4,98$ κάτι το οποίο επίσης επιβεβαιώνεται από τον ασυμπτωματικό μηδενισμό της καμπύλης του $\text{Im}[\chi^{(1)}(\delta)]$ για τιμές του $|\delta| > 5$. Τέλος, για διαφορά φάσης $\phi = 3\pi/2$ από την Εξ.26 προκύπτει ότι $\delta = 0,26$, ενώ αν δούμε το σημείο μηδενισμού της καμπύλης του $\text{Im}[\chi^{(1)}(\delta)]$ θα δούμε ότι και αυτό προκύπτει για $\delta = 0,26$.

Στην περίπτωση του διμερούς Bi_2Se_3 και για χάσμα 2000nm βλέπουμε και εδώ τα αποτελέσματα της Εξ.26 να επαληθεύονται. Συγκεκριμένα, για διαφορά φάσης $\phi = 0$ οι τιμές του δ για τις οποίες θα αναμέναμε να προκύπτει μηδενική απορρόφηση με μη μηδενική διασπορά είναι $\delta = -4$ και $\delta = 4,6$ κάτι το οποίο επιβεβαιώνεται από τον μηδενισμό της καμπύλης του $\text{Im}[\chi^{(1)}(\delta)]$ για $\delta = -4$ και $\delta = 4,63$. Για διαφορά φάσης $\phi = \pi/2$ από την Εξ.26 προκύπτει ότι $\delta = -159,62$ και $\delta = -0,60$ ενώ αν δούμε το σημείο μηδενισμού της καμπύλης του $\text{Im}[\chi^{(1)}(\delta)]$ θα δούμε ότι αυτό προκύπτει και σε $\delta \gg -10$ αλλά και για $\delta = -0,63$. Για διαφορά φάσης $\phi = \pi$ τα αποτελέσματα της Εξ.26 επιβεβαιώνονται από τον ασυμπτωματικό μηδενισμό της καμπύλης του $\text{Im}[\chi^{(1)}(\delta)]$. Τέλος, για διαφορά φάσης $\phi = 3\pi/2$ από την Εξ.26 προκύπτει ότι $\delta = 0,58$ και $\delta = 162,73$ ενώ αν δούμε το σημείο μηδενισμού της καμπύλης του $\text{Im}[\chi^{(1)}(\delta)]$ θα δούμε ότι αυτό προκύπτει για $\delta = 0,52$ και αντίστοιχα για μεγάλες τιμές του δ ασυμπτωματικά.

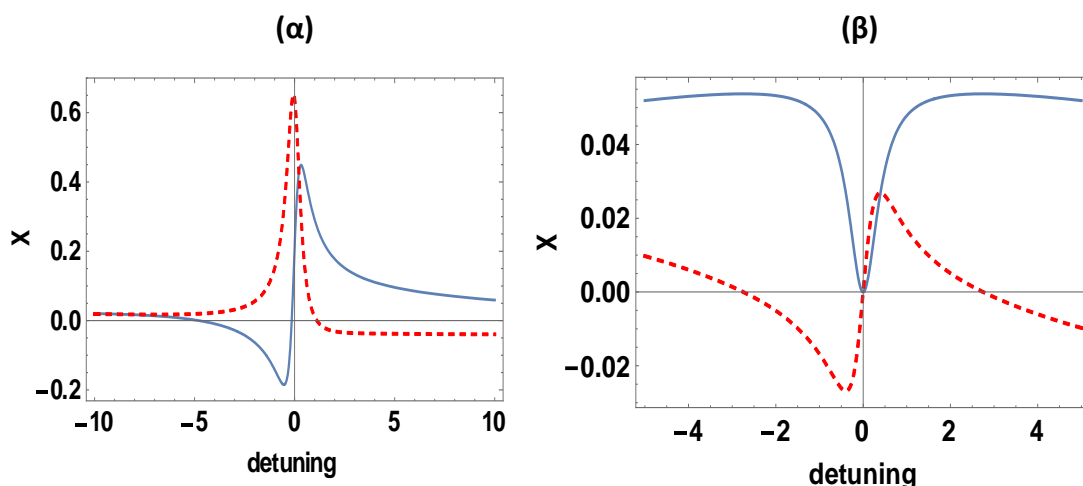
Αντίστοιχα ευρύματα θα έχουμε και στη περίπτωση του διμερούς Bi_2Se_3 για χάσμα 400nm. Συγκεκριμένα για διαφορά φάσης $\phi = 0$ οι τιμές του δ για τις οποίες θα αναμέναμε να προκύπτει μηδενική απορρόφηση με μη μηδενική διασπορά είναι $\delta = \pm 638$ κάτι το οποίο επιβεβαιώνεται από τον μηδενισμό της καμπύλης του $\text{Im}[\chi^{(1)}(\delta)]$ για $\delta = \pm 662$. Για διαφορά φάσης $\phi = \pi/2$ από την Εξ.26 προκύπτει ότι $\delta = -10987,9$ και $\delta = -1751,17$ ενώ αν δούμε το σημείο μηδενισμού της καμπύλης του $\text{Im}[\chi^{(1)}(\delta)]$ θα δούμε ότι αυτό προκύπτει για $\delta = -1799,39$ και πάλι ασυμπτωματικά για πολύ μεγάλες τιμές του δ . Για διαφορά φάσης $\phi = \pi$ τα αποτελέσματα της Εξ.26 επιβεβαιώνονται από τον ασυμπτωματικό μηδενισμό της καμπύλης του $\text{Im}[\chi^{(1)}(\delta)]$

για μεγάλες τιμές του detuning. Τέλος για διαφορά φάσης $\phi = 3\pi/2$ από την Εξ.26 προκύπτει ότι $\delta = 1750,6$ και $\delta = 10991,5$ ενώ αν δούμε το σημείο μηδενισμού της καμπύλης του $\text{Im}[\chi^{(1)}(\delta)]$ θα δούμε ότι αυτό προκύπτει για $\delta = 1724,14$ και $\delta = 11083,7$.

Τέλος, στη περίπτωση του διμερούς Bi_2Se_3 για χάσμα 200nm και συγκεκριμένα για διαφορά φάσης $\phi = 0$ οι τιμές του δ για τις οποίες θα αναμέναμε να προκύπτει μηδενική απορρόφηση με μη μηδενική διασπορά είναι $\delta = \pm 4802$, κάτι το οποίο επιβεβαιώνεται από τον μηδενισμό της καμπύλης του $\text{Im}[\chi^{(1)}(\delta)]$ για $\delta = \pm 4751$. Για διαφορά φάσης $\phi = \pi/2$ από την Εξ.26 προκύπτει ότι $\delta = -98395$ και $\delta = -16968,8$, ενώ αν δούμε το σημείο μηδενισμού της καμπύλης του $\text{Im}[\chi^{(1)}(\delta)]$ θα δούμε ότι αυτό προκύπτει για $\delta = -16968,3$ και αντίστοιχα ασυμπτωματικά για πολύ μεγάλες τιμές του δ . Για διαφορά φάσης $\phi = \pi$ τα αποτελέσματα της Εξ.26 επιβεβαιώνονται από τον ασυμπτωματικό μηδενισμό της καμπύλης του $\text{Im}[\chi^{(1)}(\delta)]$ για μεγάλες τιμές του detuning. Τέλος για διαφορά φάσης $\phi = 3\pi/2$ από την Εξ.26 προκύπτει ότι για $\delta = 16968$ και $\delta = 98399$ ενώ αν δούμε το σημείο μηδενισμού της καμπύλης του $\text{Im}[\chi^{(1)}(\delta)]$, θα δούμε ότι αυτό προκύπτει για $\delta = 16964$ και αντίστοιχα ασυμπτωματικά για μεγάλες τιμές του δ .

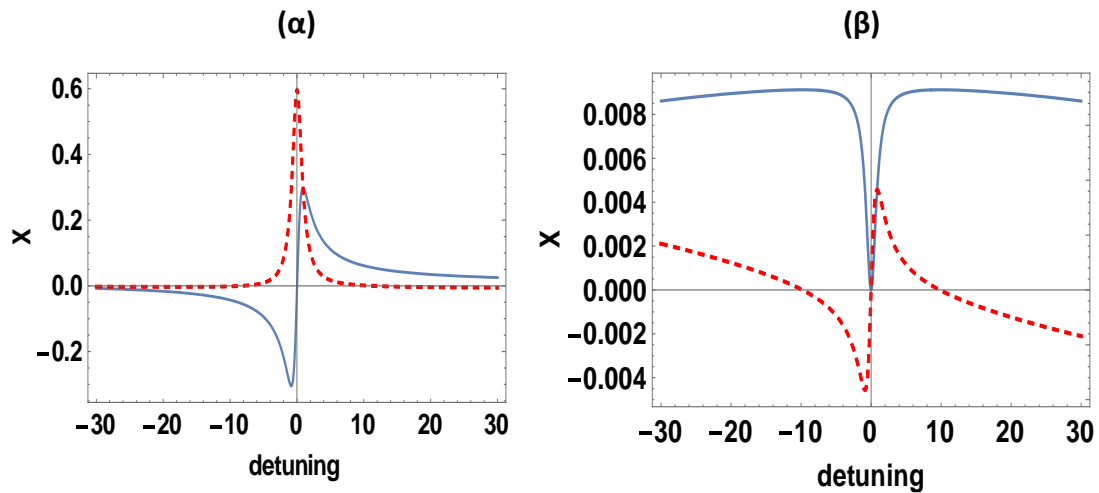
Όπως και στο διμερές Bi_2Te_3 έτσι και εδώ η περίπτωση της πλήρους οπτικής διαφάνειας παρουσιάζεται όταν επαληθεύονται οι Εξ.30-32, αλλά και όταν επαληθεύονται οι Εξ.33,34.

Αρχικά, στην περίπτωση του διμερούς Bi_2Se_3 και για χάσμα 4000nm (Εικόνα 27) βλέπουμε ότι πλήρης οπτική διαφάνεια παρουσιάζεται για την τιμή αποσυντονισμού $\delta = -8,86788$ και διαφοράς φάσης $\phi = 0.64$. Μάλιστα, στην περίπτωση όπου $E_b/E_a = -1,04631$ και $\phi = 0.0804353$ επαληθεύεται η εμφάνιση πλήρους οπτικής διαφάνειας για $\delta=0$.



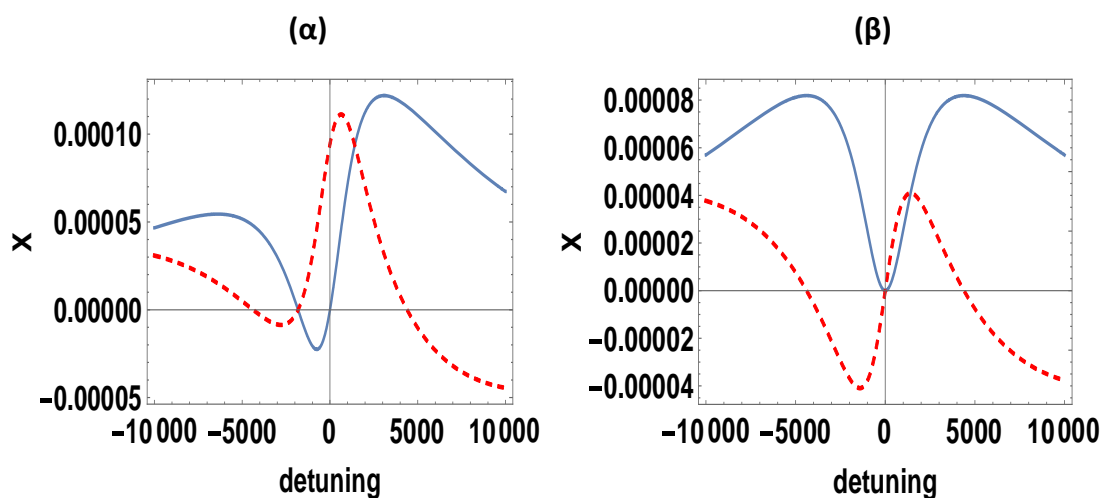
Εικόνα 26: Εμφάνιση πλήρους οπτικής διαφάνειας στη περίπτωση του διμερούς Bi_2Se_3 και για χάσμα 4000nm (α) όταν εφαρμόζονται οι Εξ.30-32 (β) όταν εφαρμόζονται οι Εξ.33,34

Στην περίπτωση του διμερούς Bi_2Se_3 και για χάσμα 2000nm (Εικόνα 28) βλέπουμε ότι πλήρης οπτική διαφάνεια παρουσιάζεται για την τιμή αποσυντονισμού $\delta = -58,76$ και διαφοράς φάσης $\phi = 0,79$. Μάλιστα στη περίπτωση όπου $E_b/E_a = 1,01635$ και $\phi = 0,013$ επαληθεύεται η εμφάνιση πλήρους οπτικής διαφάνειας για $\delta=0$.



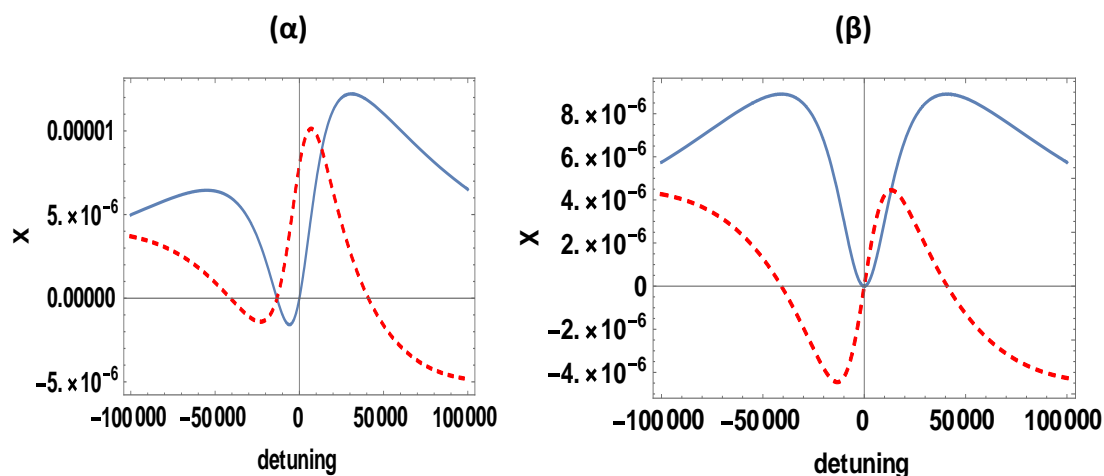
Εικόνα 27: Εμφάνιση πλήρους οπτικής διαφάνειας στη περίπτωση του διμερούς Bi_2Se_3 και για χάσμα 2000nm (α) όταν εφαρμόζονται οι Εξ.30-32 (β) όταν εφαρμόζονται οι Εξ.33,34

Στην περίπτωση του διμερούς Bi_2Se_3 και για χάσμα 400nm (Εικόνα 29) βλέπουμε ότι πλήρης οπτική διαφάνεια παρουσιάζεται για την τιμή αποσυντονισμού $\delta = -1816,7$ και διαφοράς φάσης $\phi = 0,28$. Μάλιστα, στην περίπτωση όπου $E_b/E_a = 1,43766$ και $\phi = 0$ επαληθεύεται η εμφάνιση πλήρους οπτικής διαφάνειας για $\delta=0$.



Εικόνα 28: Εμφάνιση πλήρους οπτικής διαφάνειας στη περίπτωση του διμερούς Bi_2Se_3 και για χάσμα 400nm (α) όταν εφαρμόζονται οι Εξ.30-32 (β) όταν εφαρμόζονται οι Εξ.33,34

Για το διμερές Bi_2Se_3 και για χάσμα 200nm (Εικόνα 30) βλέπουμε ότι πλήρης οπτική διαφάνεια παρουσιάζεται για την τιμή αποσυντονισμού $\delta = -13372,8$ και διαφοράς φάσης $\phi = 0,232$. Μάλιστα, στην περίπτωση όπου $E_b/E_a = 1,45913$ και $\phi = 0$ επαληθεύεται η εμφάνιση πλήρους οπτικής διαφάνειας για $\delta=0$.



Εικόνα 29: Εμφάνιση πλήρους οπτικής διαφάνειας στη περίπτωση του διμερούς Bi_2Se_3 και για χάσμα 200nm (α) όταν εφαρμόζονται οι Εξ.30-32 (β) όταν εφαρμόζονται οι Εξ.33,34

Τέλος αξίζει να αναφερθεί και η παρουσία κέρδους χωρίς αναστροφή που παρατηρείται για παράδειγμα στις Εικόνες 22(β),(δ) , 23(β),(δ) , 24(β),(δ) , 25(β),(δ).

5. Συμπεράσματα

Μελετήσαμε τις ιδιότητες γραμμικής απορρόφησης και διασποράς ενός κβαντικού συστήματος διπλού τύπου V τεσσάρων επιπέδων κοντά σε μια πλασμονική νανοδομή. Στο υπό μελέτη κβαντικό σύστημα η μία μετάβαση τύπου V επηρεάζεται από την αλληλεπίδραση με γειτονικές μικροδομές, ενώ η άλλη μετάβαση τύπου V αλληλεπιδρά με κενό ελεύθερου χώρου. Αρχικά, θεωρήσαμε σαν πλασμονική νανοδομή μια δισδιάστατη συστοιχία μεταλλικών διηλεκτρικών νανοσφαιριδίων με στόχο να συγκρίνουμε τα αποτελέσματα μας με τα αντίστοιχα της βιβλιογραφίας. Η βασική μελέτη, όμως, είχε να κάνει με μικροδομές χαλκογενιδίων του βισμούθιου, και συγκεκριμένα Bi_2Te_3 , Bi_2Se_3 . Το κβαντικό σύστημα αλληλεπιδρά με δύο ορθογώνια κυκλικά πολωμένα πεδία λέιζερ με την ίδια συχνότητα και διαφορετικές φάσεις και πλάτη ηλεκτρικού πεδίου, που συνδυάζουν τη χαμηλότερη κατάσταση με τις ανώτερες καταστάσεις στις μεταβάσεις ελεύθερου χώρου. Χρησιμοποιώντας μια μεθοδολογία πίνακα πυκνότητας για τον υπολογισμό της γραμμικής επιδεκτικότητας, δείξαμε ότι η παρουσία της πλασμονικής μικρο/νανοδομής οδηγεί σε ισχυρή τροποποίηση των φασμάτων απορρόφησης και διασποράς ενός από τα πεδία λέιζερ, παρουσία του άλλου. Επιπλέον, έχουμε δείξει ότι η διαφορά φάσης και τα σχετικά πλάτη ηλεκτρικού πεδίου των δύο πεδίων λέιζερ μπορούν να χρησιμοποιηθούν για τον αποτελεσματικό έλεγχο των οπτικών ιδιοτήτων του συστήματος. Παρατηρήθηκε πληθώρα εξωτικών φαινομένων όπως πλήρης οπτική διαφάνεια, μηδενική απορρόφηση με μη μηδενική διασπορά και κέρδος χωρίς αναστροφή, μαζί με τις συνθήκες εμφάνισης αυτών των φαινομένων. Επιπλέον, η ανάλυσή μας αποκάλυψε ότι οι μελετημένες επιδράσεις μπορούν επίσης να εμφανιστούν για μεγάλες τιμές του ρυθμού αυθόρμητης εκπομπής ελεύθερου χώρου, προσαρμόζοντας σωστά τις παραμέτρους της διαφοράς φάσης και τα σχετικά πλάτη ηλεκτρικού πεδίου των δύο πεδίων λέιζερ. Αυτό έρχεται σε αντίθεση με τα φαινόμενα κβαντικής συμβολής που λαμβάνονται όταν ένα μόνο γραμμικά πολωμένο πεδίο αλληλεπιδρά με το σύστημα.

Βιβλιογραφία

- [1]. 1953. «Pines, D. A collective description of electron interactions: IV. Electroninteraction in metals. .» *Phys. Rev.* 92 626-636 .
- [2]. 2007. «S. A. Maier, Plasmonics: Fundamentals and Applications.» *New York, NY, USA: Springer-Verlag.*
- [3]. 1991. «J. Sambles, G. Bradbery, and F. YangOptical excitation of surface plasmons: An introduction,» *Contemporary. Phys., vol. 32, no. 3* 173–183.
- [4]. 1958. «Hopfield, J. J. Theory of the contribution of excitons to the complex dielectric constant of crystals.» *Phys. Rev.* 112 1555-1567.
- [5]. 1957. «Ritchie, R. H. Plasma losses by fast electrons in thin films.» *Phys. Rev.* 106 874-881.
- [6]. 2013. «M. S. Tame, K. R. McEney, S. K. Özdemir, J. Lee, S. A. Maierand M. S. Kim, Quantum plasmonics, *Nature physics.*»
- [7]. 2013. «M. S. Tame, K. R. McEney, S. K. Özdemir, J. Lee, S. A. Maier and M. S. Kim, Quantum plasmonics.» *Nature physics.*
- [8]. 2011. «Giannini, V., Fernández-Dominguez, A. I., Heck, S. C. & Maier, S. A. Plasmonic nanoantennas: Fundamentals and their use in controlling the radiative properties of nanoemitters. *Chem. Rev.* 111 3888-3912.
- [9]. 2012. «Tassin, P., Koschny, T., Kafesaki, M. & Soukoulis, C. M. A Comparison of graphene, superconductors and metals as conductors for metamaterials and plasmonics.» *Nature Photon.* 6 259-264 .
- [10]. 1992. «Huttner, B. & Barnett, S. M. Quantization of the electromagnetic field in dielectrics.» *Phys. Rev. A* 46 4306-4322.
- [11]. 2010. «Philbin, T. G. Canonical quantization of macroscopic electromagnetism.» *New. J. Phys.* 12.
- [12]. 1968. «Crowell, J. & Ritchie, R. H. Radiative decay of Coulomb-stimulated plasmons in spheres.» *Phys. Rev.* 172 436-440.
- [13]. 2008. «Trügler, A. & Hohenester, U. Strong coupling between a metallic nanoparticle and a single molecule.» *Phys. Rev. B* 77.
- [14]. 2010. «Waks, E. & Sridharan, D. Cavity QED treatment of interactions between a metal nanoparticle and a dipole emitter.» *Phys. Rev. A* 82.
- [15]. 2008. *D. F. Walls and, G. J. Milburn, Quantum Optics.* Springer .
- [16]. 1998. «H. Dung, L. Knöll and D. Welsch, Three-dimensional quantization of the electromagnetic field in dispersive and absorbing inhomogeneous dielectrics.» *Phys. Rev. A* 57 3931-3942.
- [17]. 1998. «Barnes, W. L. Fluorescence near interfaces: The role of photonic mode density.» *J. Mod. Opt.* 45, 661-699.
- [18]. 1999. «Hecker, N. E., Höpfel, R. A., Sawaki, N., Maier, T. & Strasser, G. Surface plasmon-enhanced photoluminescence from a single quantum well. .» *Appl. Phys. Lett.* 75, 1577-1579.
- [19]. 2002. «Neogi, A. et al. Enhancement of spontaneous recombination rate in a quantum well by resonant surface plasmon coupling. *Phys. Rev. B* 66,» *Phys. Rev. B* 66, 153-305.
- [20]. 1946. «Purcell, E. M. Spontaneous emission probabilities at radio frequencies.» *Phys. Rev.* 69 674 .
- [21]. 2004. «Moreno, E., García, F. J., Erni, D., Ignacio Cirac, J. & Martín-Moreno, L. Theory of plasmon-assisted transmission of entangled photons. .» *Phys. Rev.Lett.* 92, 236801.

- [22]. 2006. «Fasel, S., Halder, M., Gisin, N. & Zbinden, H. Quantum superposition and entanglement of mesoscopic plasmons.» *New J. Phys.* **8**.
- [23]. 2007. «Guo, G. P. et al. Observation of two-photon coherence in plasmon-assisted transmission.» *Phys. Lett. A* **361** 218-222 .
- [24]. 2009. «Huck, A. et al. Demonstration of quadrature-squeezed surface plasmons in a gold waveguide. » *Phys. Rev. Lett.* **102** 246802 .
- [25]. 2012. « Di Martino, G. et al. Quantum statistics of surface plasmon polaritons in metallic stripe waveguides. » *Nano Lett.* **12** 2504-2508.
- [26]. 2006. «46. Ren, X. F., Guo, G. P., Huang, Y. F., Li, C. F. & Guo, G. C. Plasmon-assisted transmission of high-dimensional orbital angular-momentum entangled state.» *Europhys. Lett.* **76** 753-759 .
- [27]. 2009. «Kolesov, R. et al. Wave-particle duality of single surface plasmon polaritons.» *Nature Phys.* **5** 470-474 .
- [28]. 2009. «J. M. McMahon, S. K. Gray, and G. C. Schatz, “Nonlocal optical response of metal nanostructures with arbitrary shape.» *Phys. Rev. Lett.*, *vol. 103*.
- [29]. 1975. «Genzel, L., Martin, T. P. & Kreibig, U. Dielectric function and plasma resonances of small metal particles.» *Z. Physik B* **21** 339-346 .
- [30]. 1993. «Keller, O., Xiao, M. & Bozhevolnyi, S. Optical diamagnetic polarizability of a mesoscopic metallic sphere: Transverse self-field approach.» *Opt. Commun.* **102**.
- [31]. 1985. «Kreibig, U. & Genzel, L. Optical absorption of small metallic particles.» *Surf. Sci.* **156** 678-700 .
- [32]. 2012. «Scholl, J. A., Koh, A. L. & Dionne, J. A. Quantum plasmon resonances of individual metallic nanoparticles.» *Nature* **483** 421-427 .
- [33]. 1992. «Ouyang, F., Batson, P. E. & Isaacson, M. Quantum size effects in the surface-plasmon excitation of small metallic particles by electron-energy-loss spectroscopy.» *Phys. Rev. B* **46** 15421-15425 .
- [34]. 2003. «Prodan, E. & Nordlander, P. Structural tunability of the plasmon resonances in metallic nanoshells.» *Nano Lett.* **3** 543-547 .
- [35]. 2003. «Prodan, E., Nordlander, P. & Halas, N. J. Electronic structure and optical properties of gold nanoshells.» *Nano Lett.* **3** 1411-1415 .
- [36]. 2009. «Zuloaga, J., Prodan, E. & Nordlander, P. Quantum description of the plasmon resonances of a nanoparticle dimer.» *Nano Lett.* **9** 887-891 .
- [37]. 2012. «Townsend, E. & Bryant, G. W. Plasmonic properties of metallic nanoparticles: The effects of size quantization. » *Nano Lett.* **429-434** .
- [38]. 2006. «Yuan, Z. & Gao, S. Linear-response study of plasmon excitation in metallic thin films: Layer-dependent hybridization and dispersion. ,» *Phys. Rev. B* **73** 155-411.
- [39]. 2009. «Mao, L., Li, Z., Wu, B. & Xu, H. Effects of quantum tunneling in metal nanogap on surface-enhanced Raman scattering.» *Appl. Phys. Lett.* **94** 243102 .
- [40]. 2012. «Savage, K. J. et al. Revealing the quantum regime in tunnelling plasmonics.» *Nature* **491** 574-577 .
- [41]. 2012. «Esteban, R., Borisov, A. G., Nordlander, P. & Aizpurua, J. Bridging quantum and classical plasmonics.» *Nature Commun.* **3** 825 .
- [42]. 2013. «Scholl, J. A., Garcia-Etxarri, A., Koh, A. L. & Dionne, J. A. Observation of quantum tunneling between two plasmonic nanoparticles. » *Nano Lett.* **13** 564-569 .
- [43]. 2012. «Marinica, D. C., Kazansky, A. K., Nordlander, P., Aizpurua, J. & Borisov, A. G. Quantum plasmonics: Nonlinear effects in the field enhancement of a plasmonic nanoparticle dimer.» *Nano Lett.* **12** 1333-1339.

- [44]. 2002. «Monroe, C. Quantum information processing with atoms and photons.» *Nature* 416 238-246 .
- [45]. 1981. «Gersten, J. & Nitzan, A. Spectroscopic properties of molecules interacting with small dielectric particles.» *J. Chem. Phys.* 75 1139-1152 .
- [46]. 1999. «Barnes, W. L. Electromagnetic crystals for surface plasmon polaritons and the extraction of light from emissive devices. ,.» *J. Lightw. Technol.* 17 2170-2182 .
- [47]. 2017. «S.I. Bozhevolnyi, J.B. Khurgin, The case for quantum plasmonics.» *Nat. Photon.* 11 398–400.
- [48]. 2015. «P. Torma, W.L. Barnes, Strong coupling between surface plasmon polaritons and emitters: a review.» *Rep. Prog. Phys.* 78 013901.
- [49]. 2002. «Monroe, C. Quantum information processing with atoms and photons.» *Nature* 416 238-246.
- [50]. 2006. «Chang, D. E., Sørensen, A. S., Hemmer, P. R. & Lukin, M. D. Quantum optics with surface plasmons.» *Phys. Rev. Lett.* 97 053002 .
- [51]. 1968. «Drexhage, K. H., Kuhn, H. & Schäfer, F. P. Variation of the fluorescence decay time of a molecule in front of a mirror. Ber. Bunsenges. ,.» *Phys. Chem.* 72 329 .
- [52]. 1974. «Chance, R. R., Prock, A. & Silbey, R. Lifetime of an emitting molecule near a partially reflecting surface. .» *J. Chem. Phys.* 60 2744-2748.
- [53]. 1981. «Gersten, J. & Nitzan, A. Spectroscopic properties of molecules interacting with small dielectric particles. .» *J. Chem. Phys.* 75 1139-1152 .
- [54]. 2006. «Anger, P., Bharadwaj, P. & Novotny, L. Enhancement and quenching of single molecule fluorescence.» *Phys. Rev. Lett.* 96 113002 .
- [55]. 2012. «K.J. Russell, T.L. Liu, S.Y. Cui, E.L. Hu, Large spontaneous emission enhancement in plasmonic nanocavities.» *Nat. Photon.* 6 459–462.
- [56]. 2014. «Z.K. Zhou, D.Y. Lei, J. Liu, X. Liu, J. Xue, Q. Zhu, H. Chen, T. Liu, Y. Li, H. Zhang, X. Wang, Shaping the emission spectral profile of quantum dots with periodic dielectric and metallic nanostructures.» *Adv. Opt. Mater.* 2 56–64.
- [57]. 2015. «J. Li, Z. Wei, J. Xu, Z.K. Zhou, D. Kong, J. Liu, J. Liu, X. Duan, J. Xue, J. Wang, X. Wang, A large-scale flexible plasmonic nanorod array with multifunction of strong photoluminescence emission and radiation enhancement, .» *Adv. Opt. Mater.* 3 1355.
- [58]. 2010. «J. Zhang, Y. Tang, K. Lee, M. Ouyang, Tailoring light–matter–spin interactions in colloidal hetero-nanostructures.» *Nature* 466 91–95.
- [59]. 2015. «P. Vasa, W. Wang, R. Pomraenke, M. Maiuri, C. Manzoni, G. Cerullo, C. Lienau, Optical Stark effects in J-aggregate–metal hybrid nanostructures exhibiting a strong exciton–surface-plasmon-polariton interaction.» *Phys. Rev. Lett.* 114 036802.
- [60]. 2002. «[[138] H. Deng, G. Weihs, C. Santori, J. Bloch, Y. Yamamoto, Condensation of semiconductor microcavity exciton polaritons.» *Science* 298 199–202.
- [61]. 2013. «S.R.K. Rodriguez, J. Feist, M.A. Verschuuren, F.J. Garcia Vidal, J. Gomez Rivas, Thermalization and cooling of plasmon-exciton polaritons: towards quantum condensation.» *Phys. Rev. Lett.* 111 166802.
- [62]. 2017. «[[140] R. Saez-Blazquez, J. Feist, A.I. Fernandez-Dominguez, F.J. Garcia Vidal, Enhancing photon correlations through plasmonic strong coupling.» *Optica* 11 1363–1367.
- [63]. 2018. «M. Hensen, T. Heilpern, S.K. Gray, W. Pfeiffer, Strong coupling and entanglement of quantum emitters embedded in a nanoantenna-enhanced plasmonic cavity.» *ACS Photonics* 5 240–248.
- [64]. 2017. «S. Johnson, P.R. Dolan, J.M. Smith, Diamond photonics for distributed quantum networks.» *Prog. Quant. Electron.* 55 129–165.

- [65]. 1995. «Rice, P. R. & Brecha, R. J. Cavity induced transparency.» *Opt. Commun.* 126 230-235 .
- [66]. 2005. «Dintinger, J., Klein, S., Bustos, F., Barnes, W. L. & Ebbesen, T. W. Strong coupling between surface plasmon-polaritons and organic molecules in subwavelength hole arrays.» *Phys. Rev. B* 71 035424 .
- [67]. 2008. «Fofang, N. T. et al. Plexitonic nanoparticles: Plasmon-exciton coupling in nanoshell-J aggregate complexes. .» *Nano Lett.* 8 3481-3487 .
- [68]. 2011. «Passmore, B. S. et al. Observation of Rabi splitting from surface plasmon coupled conduction state transitions in electrically excited InAs quantum dots.» *Nano Lett.* 11 338-342.
- [69]. 2013. «Vasa, P. et al. Real time observations of ultrafast Rabi oscillations between excitons and plasmons in metal nanostructures with J-aggregates.» *Nature Photon.* 7 128132 .
- [70]. 2010. «Waks, E. & Sridharan, D. Cavity QED treatment of interactions between a metal nanoparticle and a dipole emitter.» *Phys. Rev. A* 82 043-845 .
- [71]. 1998. «Dung, H., Knöll, L. & Welsch, D. Three-dimensional quantization of the electromagnetic field in dispersive and absorbing inhomogeneous dielectrics. .» *Phys. Rev. A* 57 3931-3942 .
- [72]. 2007. «L. Fu, C. L. Kane, and E. J. Mele.» *Phys. Rev. Lett.* 98 106803 .
- [73]. 2009. «Y. Xia, D. Qian, D. Hsieh, L. Wray, A. Pal, H. Lin, A. Bansil, D. Grauer, Y. S. Hor, R. J. Cava, and M. Z. Hasan.» *Nat. Phys.* 5 398 .
- [74]. 2009. «H. Zhang, C.-X. Liu, X.-L. Qi, X. Dai, Z. Fang, and S.-C. Zhang.» *Nat. Phys.* 5 438 .
- [75]. 2017. «B. Yan and C. Felser. Topological materials: Weyl semimetals.» *Annual Review of Condensed Matter Physics*, 8(1) 337–354.
- [76]. 2009. «Y. Xia et al.» *Nat. Phys.* 5.
- [77]. 2009. «Y. L. Chen et al.» *Science* 325 178.
- [78]. 2020. «Marie S. Rider et al. Experimental signature of a topological quantum dot.» *Nanoscale*.
- [79]. 2016. «G. Siroki, D. K. K. Lee, P. D. Haynes and V. Giannini, Single-electron induced surface plasmons on a topological nanoparticle.» *Nat. Commun.* 12375.
- [80]. 2019. «L. Gioia, M. Christie, U. Zülicke, M. Governale and A. Sneyd, Spherical topological insulator nanoparticles: Quantum size effects and optical transitions.» *Phys. Rev. B: Condens. Matter Mater. Phys.* 205417.
- [81]. 2017. «Y. L. Chen, J. G. Analytis, J.-H. Chu, Z. K. Liu, S.-K. Mo, X. L. Qi, H. J. Zhang, Experimental Realization of a Three-Dimensional Topological Insulator, Bi₂Te₃.» *Science Mag* .
- [82]. 2010. «D. Teweldebrhan, V. Goyal and A. A. Balandin, Exfoliation and characterization of Bismuth Telluride atomic quintuples and quasi-two-dimensional crystals.» *Nano Lett.* 1209–1218.
- [83]. 2017. «M. S. Sokolikova, P. C. Sherrell, P. Palczynski, V. L. Bemmer and C. Mattevi, Room-temperature growth of colloidal Bi₂Te₃ nanosheets.» *Chem. Commun.* 8026-8029.
- [84]. 2009. «M. Scheele, N. Oeschler, K. Meier, A. Kornowski, C. Klinke and H. Weller, Synthesis and thermoelectric characterization of Bi₂Te₃ nanoparticles.» *Adv. Funct. Mater.* 3476–3483.
- [85]. 2009. «Y. Xia, D. Qian, D. Hsieh, L. Wray, A. Pal, H. Lin, A. Bansil, D. Grauer, Y. S. Hor, R. J. Cava, and M. Z. Hasan. Observation of a large-gap topological-insulator class with a single dirac cone on the surface.» *Nature Physics*.

- [86]. 2009. «H. Zhang, C.-X. Liu, X.-L. Qi, X. Dai, Z. Fang, and S.-C. Zhang. Topological insulators in Bi_2Se_3 , Bi_2Te_3 and Sb_2Te_3 with a single Dirac cone on the surface. » *Nature Physics*.
- [87]. 2009. «D. Hsieh et al., Observation of time-reversal-protected- single Dirac cone topological insulator states in Bi_2Te_3 .» *Phys. Rev. Lett.*
- [88]. 2009. «H. Zhang .» *Nat. Phys.* 5.
- [89]. 2009. «Y. Xia, D. Qian, D. Hsieh, L. Wray, A. Pal, H. Lin, A. Bansil, D. Grauer, Y. S. Hor, R. J. Cava, and M. Z. Hasan. Observation of a large-gap topological-insulator class with a single Dirac cone on the surface.» *Nature Physics*.
- [90]. 2013. «Paspalakis, Evangelou, Yannopapas, Terzis: Phase-dependent optical effects in a four-level quantum system near a plasmonic nanostructure.» *PHYSICAL REVIEW A* 88, 053832 .
- [91]. 1974. «Drexhage, K.H. Interaction of light with monomolecular dye lasers. .» *Prog. Opt.* 163-232.
- [92]. 2008. *Walls, D. F. & Milburn, G. J. Quantum Optics*. Springer.
- [93]. 2022. «Nikolaos Kyvelos , Georgios Tsigaridas, Emmanuel Paspalakis, Vassilios Yannopapas: Quantum Interference in Spontaneous Decay of a Quantum Emitter Placed in a Dimer of Bismuth-Chalcogenide Microparticles.» *Photonics*.
- [94]. 2017. «Dubroka, et al: Interband absorption edge in the topological $\text{Bi}(\text{Te}_{1-x}\text{Se}_x)_3$.» *Phys. Rev. B* 96, 235202.
- [95]. 2020. «Rider et al: xperimental signature of a topological quantum dot. .» *Nanoscale* 22817–22825.
- [96]. n.d. «Colas des Francs, et al: Plasmonic Purcell factor and coupling efficiency to surface plasmons. Implications for addressing and controlling optical nanosources.» *J. Opt.* 2016 094005.
- [97]. 2020. «Chatzidakis, G.D.; Yannopapas, V. Strong electromagnetic coupling in dimers of topological-insulator nanoparticles and quantum emitters.» *Phys. Rev. B* , 101, 165410. .
- [98]. 2021,. «Karaoulanis, D.; Paspalakis, E.; Yannopapas, V. Quantum interference near bismuth-chalcogenide microstructures.» *J. Opt. Soc. Am. B* 38, 3301–3308.
- [99]. 2021. «22. Vladimirova, Y.V.; Zadkov, V.N. Quantum Optics in Nanostructures.» *Nanomaterials* 11, 1919.
- [100]. 2000. «G. S. Agarwal, .» *Phys. Rev. Lett.* 84.
- [101]. 1995. «S.-Y. Zhu, R. C. F. Chan, and C. P. Lee, *Phys. Rev. A* 52, 710 .»
- [102]. 1996. «S.-Y. Zhu and M. O. Scully, *Phys. Rev. Lett.* 76, 388.»
- [103]. 1998. «E. Paspalakis and P. L. Knight, *Phys. Rev. Lett.* 81, 293.»
- [104]. 1999 «C. H. Keitel, *Phys. Rev. Lett.* 83, 1307 .»
- [105]. 2003 « M. Macovei and C. H. Keitel, *Phys. Rev. Lett.* 91, 123601 .»
- [105]. 2003. «M. Macovei and C. H. Keitel, *Phys. Rev. Lett.* 91, 123601 .»
- [106]. 2010. «For a recent review see M. Kiffner, M. Macovei, J. Evers, and C. H. Keitel, *Progress in Optics*, ed. E. Wolf, Vol. 55.»
- [107]. 2005. «Pelton, M. Modified spontaneous emission in nanophotonic structures. *Nat. Photon.*, 9, 427–435.»
- [108]. 2000. «N. Stefanou, V. Yannopapas, and A. Modinos, *Comput. Phys. Commun.* 113,49, 132, 189.»
- [109]. 2007. «V. Yannopapas and N. V. Vitanov, *Phys. Rev. B* 75, 115124 .»
- [110]. 2011. «S. Evangelou, V. Yannopapas, and E. Paspalakis, *Phys. Rev. A* 83, 023819.»
- [111]. 2008. «J.-Y. Yan, W. Zhang, S.-Q. Duan, and X.-G. Zhao, *J. Appl. Phys.* 103, 104314.»

- [112]. 2012. «J.-B. Li, N.-C. Kim, M.-T. Cheng, L. Zhou, Z.-H. Hao, and Q.-Q. Wang, *Opt.Express* 20, 1856.»
- [113]. 2010. «S. M. Sadeghi, *Nanotechnology* 21, 455401.»
- [114]. 2013. «S. G. Kosionis, A. F. Terzis, S. M. Sadeghi, and E. Paspalakis, *J. Phys.: Condens. Matter* 25, 045304.»
- [115]. 2001. «D. Bortman-Arbiv, A. D. Wilson-Gordon, and H. Friedmann, *Phys. Rev. A* 63, 043818.»
- [116]. 1992. M. Fleischhauer, C. H. Keitel, M. O. Scully, C. Su, B. T. Ulrich, and S.-Y. Zhu, *Phys. Rev. A* 46, 1468 .»
- [117]. 1976. G. Alzetta, A. Gozzini, L. Moi, and G. Orriols, *Nuovo Cimento B* 36, 5 .
- [118]. 1979. H. Gray, R. Whitley, and C. Stroud, *Opt. Lett.* 3, 218.»
- [119]. 1976. R. M. Whitley and C. R. Stroud, *Phys. Rev. A* 14, 1498.»
- [120]. 1983. «J. Fontana and R. Pantell, *J. Appl. Phys.* 54, 4285.»
- [121]. 2013. «L. Wang, Y. Gu, H. Chen, J.-Y. Zhang, Y. Cui, B. D. Gerardot, and Q. Gong, *Sci. Rep.* 3, 2879.»
- [122]. 2017. «Thanopoulos, I.; Yannopapas, V.; Paspalakis, E. Non-Markovian dynamics in plasmon-induced spontaneous emission interference. *Phys. Rev. B*, 95, 075412.»
- [123]. 2018. «Leng, H.; Szychowski, B.; Daniel, M.-C.; Pelton, M. Strong coupling and induced transparency at room temperature with single quantum dots and gap plasmons. *Nat. Commun.*, 9, 4012. .»
- [124]. 1998. «Agarwal, G.S. Spectroscopy of strongly coupled atom–cavity systems: A topical review. *J. Mod. Opt.*, 45, 449–470.»
- [125]. 2018. «51. Dovzhenko, D.S.; Ryabchuk, S.V.; Rakovich, Y.P. Nabiev, I.R. Light–matter interaction in the strong coupling regime: Configurations, conditions, and applications. *Nanoscale*, 10, 3589–3605.»