Національна академія наук України
Інститут фізики

Столяров Євген Володимирович

УДК 53.01; 535.3

Транспорт фотонів у одновимірних хвилеводах та неадіабатична молекулярна динаміка

01.04.05 – оптика, лазерна фізика

Автореферат
дисертації на здобуття наукового ступеня
кандидата фізико-математичних наук

Київ – 2021

Дисертацією є рукопис.
Робота виконана в Інституті фізики НАН України.

Науковий керівник: доктор фізико-математичних наук, старший науковий співробітник, **Чумак Олександр Олександрович**, Інститут фізики НАН України, головний науковий співробітник відділу теоретичної фізики

Офіційні опоненти: член-кореспондент НАН України, доктор фізико-математичних наук, професор, **Лев Богдан Іванович,** Інститут теоретичної фізики ім. М. М. Боголюбова НАН України, завідувач відділу синергетики

доктор фізико-математичних наук, професор, **Решетняк Віктор Юрійович,** Київський національний університет імені Тараса Шевченка, завідувач кафедри теоретичної фізики

Захист відбудеться «_8_» _квітня_ 2021 р. о _14:30_ на засіданні спеціалізованої вченої ради Д 26.159.01 при Інституті фізики НАН України за адресою:
03028, Київ, проспект Науки, 46.

З дисертацією можна ознайомитись у науковій бібліотеці Інституту фізики НАН України

Автореферат розісланий «___» _березня_ 2021 р.

Т.в.о. вченого секретаря
спеціалізованої вченої ради Д 26.159.01 Назаренко В. Г.

ЗАГАЛЬНА ХАРАКТЕРИСТИКА РОБОТИ

Актуальність роботи. Розуміння процесів взаємодії світла та матерії на квантовому рівні є вкрай важливим для багатьох сфер досліджень. Зокрема це нанофотоніка, квантові обчислення та квантова криптографія, лазерна спектроскопія, фотофізика та фотохімія. Сучасний рівень технологій дає змогу працювати зі світлом та матерією на рівні одиночних фотонів та окремих квантових випромінювачів. Такими випромінювачами можуть бути окремі атоми та молекули, центри забарвлення в кристалах, атомоподібні (*atom-like*) системи, такі як напівпровідникові квантові точки та штучні атоми на контактах Джозефсона.

Фотони можуть використовуватись для обміну квантовою інформацією між вузлами квантових кіл, в яких ця інформація може або зберігатись, або оброблятись та передаватись на інші вузли [1]. Вузли з'єднуються хвилеводами (мікрохвильовими чи оптичними), що забезпечують обмін фотонами у квантовій мережі майже без втрат. У хвилеводах випромінювання локалізується в поперечній (до напрямку поширення) площині, формуючи ефективний (квазі)-одновимірний електромагнітний континуум для фотонів, що поширюються. В такому модифікованому електромагнітному оточенні посилюється взаємодія між світлом та матерією [2]. Сильна взаємодія між світлом та квантовими випромінювачами дає змогу здійснювати швидку та точну передачу квантового стану між полем та випромінювачем, що є важливим для реалізації одно- та багатокубітних квантових логічних операцій [3]. Стрімкий прогрес у створенні та контролі різноманітних хвилевідних систем [2] та експериментальна демонстрація детерміністичних джерел одно- та багатофотонних станів у мікрохвильовому [4,5,6] та оптичному [7,8] діапазонах вказують на перспективність хвилевідних систем як апаратної платформи. На цій платформі можна створювати і окремі пристрої, і комплексні системи квантової обробки інформації. Такий технологічний поступ стимулює теоретичні дослідження хвилевідних систем та можливих напрямків їхнього застосування. Наприклад, запропоновано декілька архітектур для реалізації універсальних квантових обчислень [9, 10] на базі хвилевідних систем. До того ж, вивчення фотонного транспорту в хвилеводах з квантовими випромінювачами має ще й фундаментальний аспект, оскільки такі системи є прикладом систем з сильними міжчастинковими кореляціями. Завдяки (квазі)-одновимірній геометрії та посиленню взаємодії між фотонами та випромінювачами з'являються сильні міжфотонні кореляції. Ці кореляції спричинюють утворення заплутаних [11] та зв'язаних [12,13] фотонних станів, генерацію суб- та суперпуассонівського світла [14,15] та багатофотонних станів [16,17,18]. Останніми роками сформувався новий напрям квантової оптики – *квантова електродинаміка у хвилеводі* (*waveguide quantum electrodynamics*) [2], який охоплює широкий спектр задач, пов'язаних із взаємодією світла та квантових випромінювачів у одновимірних хвилеводах.

Для вивчення фотофізичних та фотохімічних процесів [19,20], а також багатьох задач лазерної спектроскопії та матеріалознавства вкрай важливим є наявність ефективних методів симуляції неадіабатичної динаміки в молекулярних системах. Зазвичай для опису *ab initio* молекулярної динаміки використовують наближення Борна-Оппенгаймера. Суть цього наближення полягає в тому, що завдяки суттєвій різниці в масах ядер та електронів, їхня динаміка може розглядатись окремо. Однак у фотоіндукованих процесах, таких як, наприклад, перенос енергії та заряду в фотосинтетичних комплексах та в системах фотовольтаїки [19,20,21], стани ядер та електронів можуть стати заплутаними. Тоді наближення Борна-Оппенгаймера перестає працювати і необхідно використовувати точніші підходи для опису неадіабатичної електронно-ядерної динаміки в молекулярних системах [22,23]. Використання повністю квантових підходів для моделювання систем, що складаються з великої кількості частинок (наприклад, органічних молекул) потребує значних обчислювальних ресурсів і в багатьох випадках практично неможливе. Тому для моделювання молекулярних систем використовують змішані квантово-класичні (*quantum-classical*) підходи [23, 24, 25]. Основна ідея цих методів полягає у тому, що еволюція ядерних ступенев вільності описується класичними (ньютонівськими) рівняннями руху, а динаміка електронної підсистеми описується квантовомеханічно, наприклад, методами залежного від часу функціоналу густини.

Зв'язок роботи з науковими програмами, планами, темами. Робота виконувалась у відділі теоретичної фізики Інституту фізики НАН України. Дослідження, що складають зміст дисертації, виконувались у рамках таких бюджетних тем: 1.4.1. ВЦ/138 «Нанофізика квантоворозмірних та низьковимірних структур, у тому числі на поверхні твердого тіла, в металоорганічних, полімерних та рідкокристалічних системах, молекулярна наноелектроніка» (0107U002165); 1.4.1. В/133 «Оптичні та транспортні властивості нелінійних і просторово обмежених систем» (0107U002349); 1.4. В/161 «Явища переносу і дисипації в нелінійних та обмежених середовищах» (0112U003150); 1.4. ВЦ/156 «Дослідження конденсованих систем на нанометровому рівні з метою з'ясування розмірних фізичних ефектів, розроблення фізичних основ нових електронних і іонних технологій» (0112U002509); 1.4. В/183 «Релаксаційні та розмірні явища в лінійних та нелінійних середовищах» (0117U002613); 1.4. ВЦ/188 «Фундаментальні процеси, що визначають властивості новітніх фізичних об'єктів та матеріалів для електроніки, оптоелектроніки, фотоніки та спінтроніки» (0117U002612).

Мета і завдання дослідження. Мета дослідження полягала у вивченні взаємодії фотонних хвильових пакетів з локалізованими квантовими випромінювачами, такими як дворівневий атом (кубіт) та система резонатор-кубіт, в одновимірному електромагнітному середовищі, яке реалізуються у хвилеводах. Ще одна з основних цілей роботи полягала в побудові нового теоретичного підходу для опису електронно-ядерної динаміки в молекулярних системах, який послідовно враховував би кореляційні ефекти та явище декогеренції.

Задання дослідження полягало у виведенні рівнянь еволюції стану системи, розробці числових алгоритмів та проведенні симуляцій, які б дали вичерпну інформацію щодо динаміки розсіяння хвильових пакетів (фотонних чи ядерних) на квантових випромінювачах в одновимірній геометрії чи у випадку перетину ізоенергетичних поверхонь у молекулярних системах.

Об'єктами дослідження є: фотонні хвильові пакети, що поширюються в одновимірних хвилеводах; локалізовані квантові випромінювачі (дворівневий атом чи система резонатор-кубіт), що взаємодіють зі світлом в одновимірному хвилеводі; локалізовані ядерні хвильові пакети, еволюція яких визначається ізоенергетичними поверхнями відповідних молекулярних систем; електронні адіабатичні рівні.

Предметом дослідження є: 1) просторові, спектральні, та статистичні характеристики електромагнітного випромінювання, яке розсіюється на випромінювачах **в од**новимірних хвилеводах; 2) еволюція стану випромінювача під час взаємодії з фотонним хвильових пакетом; 3) просторова та часова еволюція ядерних хвильових пакетів та часова динаміка населеностей адіабатичних електронних рівнів у молекулярних системах.

Методи дослідження. Робота має теоретичний характер. В ній використовувались як аналітичні, так і числові методи розрахунків. Для розв'язку більшості систем звичайних диференціальних рівнянь, які зустрічаються в роботі, використовувався метод інтегрального перетворення Лапласа. Розв'язок деяких диференціальних рівнянь здійснювався числовими методами такими як метод Ейлера та сімейство методів Рунґе-Кутти. Взаємодія атома з полем описується за допомогою гамільтоніанів Рабі та Джейнса-Каммінґса. Наближена діагоналізація гамільтоніанів здійснюється, використовуючи метод унітарних перетворень типу Шріффера-Вольффа. Для опису еволюції просторово-часових та спектральних характеристик світла використовуються підходи рівнянь Гайзенберга та функції розподілу фотонів у (фазовому) координатно-імпульсному просторі. Неадіабатична динаміка молекул досліджується за допомогою змішаного квантово-класичний підходу, в якому електронні переходи описуються, використовуючи формалізм оператора густини, а рух ядер по ізоенергетичних поверхнях описується класичними рівняннями руху.

Наукова новизна одержаних результатів. Основні результати, які визначають наукову новизну дисертації такі:

1. Визначено, що статистика світла, яке відбилось від дворівневого атома (кубіта) при його збудженні хвильовим пакетом у когерентному стані, залежить від середньої кількості фотонів у вхідному імпульсі та від параметра зв'язку між атомом та модою хвилеводу.

2. Показано, що після розсіяння однофотонного хвильового пакета на кубіті фотонна функція розподілу у фазовому (координатно-імпульсному) просторі може набувати від'ємних значень у деяких областях фазового простору навіть за умови скрізь позитивної початкової функції розподілу.

3. Отримано точні аналітичні вирази амплітуд ймовірностей, які описують еволюцію повного квантового стану системи хвилевід-резонатор-дворівневий атом (кубіт) у випадку одно- та двофотонного вхідного хвильового пакету.

4. Визначено, що ймовірність потрапляння одночасно двох збуджень у систему резонатор-кубіт істотно менша, ніж у випадку резонатора, від'єднаного від кубіта, що є проявом фотонної блокади.

5. Показано, що коли резонатор та кубіт взаємодіють, спектр двофотонного хвильового пакета модифікується в процесі взаємодії із системою резонатор-кубіт. Продемонстровано, що стан розсіяних фотонів є заплутаним, що якісно відрізняє його від сепарабельного стану вхідних фотонів.

6. Продемонстровано фундаментальні обмеження на метод дисперсного зчитування кубіта вимірюючим сигналом в однофотонному стані. Вони пов'язані з тим, що зміна швидкості «витікання» фотона з резонатора та величина дисперсного зсуву частоти резонатора протилежним чином впливають на швидкість вимірювання та парселівський час життя кубіта. Показано, що існує комбінація значень цих параметрів, при якій контраст зчитування є максимальним для заданої тривалості вимірюючого однофотонного імпульсу.

7. Представлено новий підхід до опису скорельованої електронно-ядерної динаміки в молекулярних системах. Методом оператора густини отримано рівняння еволюції населеностей адіабатичних електронних рівнів та описані квантові флуктуації навколо класичних траєкторій ядер. Показано, що в граничному випадку сильної декогеренції ці рівняння стають марківськими. Досліджено і немарківський режим. Використовуючи запропонований теоретичний підхід, створено алгоритм для моделювання неадіабатичної молекулярної динаміки.

Практичне значення отриманих результатів. Продемонстроване в роботі явище модифікації спектру та індуковане частотне заплутування фотонів, що розсіялись на локалізованому випромінювачі в одновимірному хвилеводі, може використовуватись для створення спектральних фільтрів, частотних конверторів, та джерел пар частотно-заплутаних фотонів (біфотонів) з регульованими характеристиками. Новий алгоритм моделювання неадіабатичної електронно-ядерної динаміки в поєднанні з вже існуючими програмними пакетами для розрахунку електронних станів молекул можна використати для моделювання фотоіндукованих процесів у складних молекулах та молекулярних комплексах. Такі симуляції можуть виявити нові шляхи покращення ефективності фотоелементів та надати нову інформацію щодо процесів у фотосинтетичних комплексах.

Особистий внесок здобувача. Результати, які складають основний зміст дисертації, опубліковані в статтях [1*–5*]. Робота [3*] опублікована без співавторів. Статті [1*,2*,4*,5*] опубліковані в співавторстві. В них дисертант брав безпосередню участь у постановці задач, розробці методів їхнього розв'язку, проведенні розрахунків, обговоренні та інтерпретації результатів, та написанні статей. Усі результати чисельних розрахунків у роботах [1*,2*] та аналітичних розрахунків у статті [2*] отримані автором. В статті [4*] автор отримав усі чисельні та аналітичні результати, які стосуються моделі, що враховує парселлівський розпад кубіта. В роботі [5*] автор програмно реалізував запропонований алгоритм, отримав усі чисельні результати та зробив частину викладок. Автор запропонував використати розклад Шмідта для апроксимації інтегро-диференціального рівняння системою диференціальних рівнянь, що значно прискорило розрахунки.

Апробація результатів роботи. Матеріали дисертації доповідались на наукових семінарах відділу теоретичної фізики Інституту фізики НАН України, 39-й Підсумковій науковій конференції ІФ НАН України (2014 р), та низці міжнародних конференцій:

- International Conference for Young Scientists Low Temperature Physics (ICYS LTP2012), 14–18 May 2012, Kharkiv, Ukraine.

- 13-th International Young Scientists Conference Optics and High Technology Material Science (SPO2012), 25–28 October 2012, Kyiv, Ukraine.
- 3-rd Young Scientists Conference Modern Problems of Theoretical Physics, 23–26 October 2012, Kyiv, Ukraine.
- 13-th Kharkiv Young Scientists Conference on Radiophysics, Electronics, Photonics and Biophysics, 4–7 December 2012, Kharkiv, Ukraine.
- 3-rd International Conference for Young Scientists Low Temperature Physics (ICYS LTP2013), 3–7 June 2013, Kharkiv, Ukraine.
- International School & Conference on Nanoscience and Quantum Transport (nanoQT-2016), 8–14 October 2016, Kyiv, Ukraine.
- APS March Meeting 2020, 2–6 March 2020, Denver, USA.

Публікації. Матеріали, представлені в дисертації, опубліковано в 10 роботах – 5 статей у наукових журналах [1*–5*] та 5 тез конференцій [6*–10*].

Структура та об'єм роботи. Дисертація складається з анотації, вступу, п'яти розділів основної частини, висновків, чотирьох додатків, переліку посилань, та додатку з переліком публікацій автора. Основна частина містить 29 рисунків та 1 таблицю. Загальний обсяг дисертації становить 188 сторінок. 20 сторінок займає список літературних джерел, що складається зі 192 найменувань.

ОСНОВНИЙ ЗМІСТ РОБОТИ

У **вступі** обґрунтовано актуальність теми дослідження, сформульовано мету та задачі, показано наукову та практичну цінність отриманих результатів.

У **першому розділі** розглядається взаємодія окремого дворівневого атома (кубіта) з електромагнітним полем, що поширюється в одновимірному хвилеводі. У ***підрозділі 1.2*** коротко обговорюються основні фізичні системи, в яких реалізується квантова електродинаміка у хвилеводі. У ***підрозділі 1.3*** наведено математичну модель системи, що розглядається. Система хвилевід-атом моделюється гамільтоніаном такого вигляду ($\hbar = 1$):

$$\hat{\mathcal{H}} = \int \mathrm{d}p\, \omega_p b_p^\dagger b_p + \omega_\mathrm{a}\sigma_+\sigma_- + \int \mathrm{d}p g_p \left(b_p^\dagger \mathrm{e}^{-\mathrm{i}px_\mathrm{a}} + b_p \mathrm{e}^{\mathrm{i}px_\mathrm{a}}\right)(\sigma_- + \sigma_+). \quad (1)$$

Перший доданок в (1) описує хвилевід, який моделюється континуумом незалежних бозонних мод, де $b_p(b_p^\dagger)$ – оператор знищення (народження) фотона з хвильовим вектором p та частотою ω_p. Другий доданок у гамільтоніані (1) описує дворівневий атом (*кубіт*) з частою переходу ω_a між рівнями $|g\rangle$ та $|e\rangle$. Взаємодія між кубітом та полем хвилевода описується третім доданком у гамільтоніані (1). Константа взаємодії кубіта з полем визначається як $g_p = d_{ge}\sqrt{\omega_p/(4\pi\hbar\epsilon_0 A)}$, де d_{ge} – матричний елемент дипольного переходу кубіта, A – площа перерізу моди випромінювання.

Оскільки частота переходу кубіта ω_a та центральна частота ω_0 хвильового пакету (імпульсу), що його збуджує – величини одного порядку, а спектральна ширина імпульсу $\gamma_0 \ll \omega_0, \omega_\mathrm{a}$, то можна розглядати лише вузьку смугу поблизу частоти ω_0, якій відповідають хвильові вектори $\pm p_0$. Моди з хвильовими векторами поблизу p_0 відповідають фотонам, що поширюються у хвилеводі зліва направо (l-моди). Моди з хвильовими векторами поблизу $-p_0$ відповідають поширенню фотонів справа наліво (r-моди). Отже, нелінійне (в загальному випадку) дисперсійне співвідношення ω_p, можна *лінеаризувати* поблизу точки ω_0: $\omega_{p\approx p_0} \approx \omega_0 + v_g(p-p_0) \equiv \omega_p^l$, та $\omega_{p\approx p_0} \approx \omega_0 - v_g(p-p_0) \equiv \omega_p^r$, де v_g – групова швидкість поширення фотонів у хвилеводі. Гамільтоніан хвилевода [перший доданок в (1)] апроксимується як $\int \mathrm{d}p\, \omega_p b_p^\dagger b_p \approx \int \mathrm{d}p\, \omega_p^l l_p^\dagger l_p$ (при $p \approx p_0$) та $\int \mathrm{d}p\, \omega_p b_p^\dagger b_p \approx \int \mathrm{d}p\, \omega_p^r r_p^\dagger r_p$ (при $p \approx -p_0$). В такому наближенні модельний гамільтоніан (1) можна переписати як

$$\hat{\mathcal{H}} = \int \mathrm{d}p \sum_{\mu=l,r} \omega_p^\mu\, \mu_p^\dagger \mu_p + \omega_\mathrm{a}\, \sigma_+\sigma_- + g \int \mathrm{d}p \sum_{\mu=l,r} \left[\mu_p^\dagger \sigma_- + \sigma_+ \mu_p\right], \tag{2}$$

де μ – оператор знищення фотона з хвильовим вектором в μ-моді ($\mu \in \{l, r\}$). У гамільтоніані (1) використано *наближення обертової хвилі* (*rotating-wave approximation*). Кількість збуджень у системі незмінна, оскільки оператор повної кількості збуджень в системі $\hat{N}_\mathrm{ex} = \sum_{\mu=l,r} \int \mathrm{d}p \mu_p^\dagger \mu_p + \sigma_+\sigma_-$ є інтегралом руху $[\hat{N}_\mathrm{ex}, \hat{\mathcal{H}}] \equiv 0$. Можна зробити заміну гамільтоніану (2): $\hat{\mathcal{H}} \to \hat{\mathcal{H}} - \omega_0 \hat{N}_\mathrm{ex}$. Використовуючи цей гамільтоніан, у ***підрозділі 1.4*** виводяться рівняння руху для фотонних та атомних операторів.

У ***підрозділі 1.5*** розглядається взаємодія кубіта з хвильовим пакетом у когерентному стані. Багатомодовий когерентний стан визначається як

$$|\Psi\{\mathcal{A}\}\rangle = \exp\left\{\int \mathrm{d}p \left[\mathcal{A}_p l_p^\dagger(t_0) - \mathcal{A}_p^* l_p(t_0)\right]\right\} |\varnothing\rangle, \quad \mathcal{A}_p = \sqrt{N_0}\, \xi_p, \tag{3}$$

де ξ_p – спектральна функція розподілу хвильового пакета. В роботі спектральний розподіл вхідного імпульсу ξ_p моделюється гауссовою функцією

$$\xi_p = \sqrt[4]{\frac{w^2}{\pi}} \exp\left(-\frac{w^2}{2} p^2 - \mathrm{i} p x_0\right), \quad \int \mathrm{d}p |\xi_p|^2 = 1, \tag{4}$$

де $w = v_g \tau_\mathrm{p}$ – просторова ширина імпульсу, τ_p – тривалість імпульсу, x_0 – початкове (при $t = t_0$) положення центра імпульсу.

Використовуючи рівняння руху атомних операторів, одержаних у ***підрозділі 1.4***, знайдемо рівняння еволюції населеності кубіта:

$$(\partial_t + \Gamma)\langle\sigma_+\sigma_-\rangle = -2g^2 N_0 \Xi(t) \int_{t_0}^t \mathrm{d}\tau Q(t-\tau) \Xi^*(\tau) \langle\sigma_z(\tau)\rangle, \tag{5}$$

де $\Xi(t) = \int \mathrm{d}p \mathrm{e}^{-\mathrm{i}v_g p t} \xi_p$, $Q(t) = \cos(\Delta_\mathrm{a} t)\mathrm{e}^{-\Gamma t/2}$, $\Delta_\mathrm{a} = \omega_\mathrm{a} - \omega_0$. Параметр $\Gamma = 4\pi g^2/v_g$ – швидкість *спонтанного* розпаду збудженого стану кубіта у хвилевід. В рівнянні (5) усереднення проведено по стану (3). На Рис. 1 продемонстровано залежність характеру динаміки населеності збудженого стану кубіта від середньої кількості фотонів у вхідному імпульсі N_0. Обчислення показують, що при збільшенні N_0 часова залежність населеності стає осцилюючою. У випадку довгих вхідних імпульсів ($\Gamma\tau_\mathrm{p} \gg 1$) осциляції населеності виникають за умови $2v_g g\sqrt{N_0}\Xi/\pi > 1$ та експоненціально затухають як $\exp(-3\Gamma t/4)$.

Статистичні властивості випромінювання, що розсіялось на кубіті, описуються дисперсією середньої кількості розсіяних фотонів $\langle\delta\hat{N}_\mu^2\rangle_\infty \equiv \langle(\hat{N}_\mu - N_\mu)^2\rangle_\infty$, де $N_\mu = \langle\hat{N}_\mu\rangle_\infty$ – середня кількість розсіяних фотонів у μ-моді. Ці величини обчислюються у довгочасовій границі $t_\infty \gg (t_0 + |x_0|/v_g) + \tau_\mathrm{p} + \Gamma^{-1}$, коли всі процеси взаємодії кубіта з випромінюванням вже завершились.

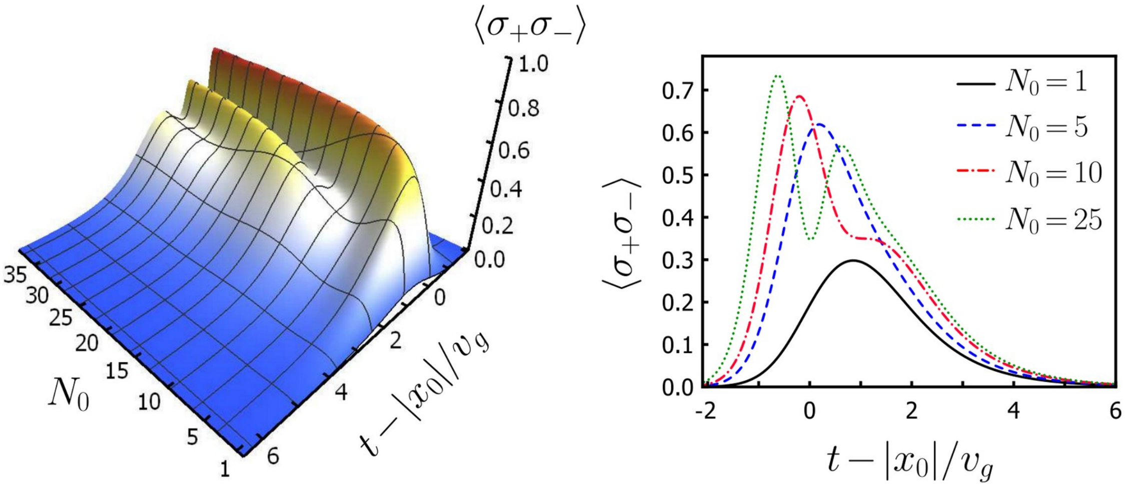

Рис. 1. Вплив середньої кількості фотонів у вхідному імпульсі на динаміку збудження кубіта для $\Gamma\tau_{\rm p} = 1$. Решта параметрів системи такі: $\Delta_{\rm a} = 0$, $x_0/w = -10$. Час вимірюється в одиницях тривалості вхідного імпульсу $\tau_{\rm p}$.

Середня кількість відбитих фотонів (в r-моді) визначається як $N_r(t) = \frac{\Gamma}{2}\int_{t_0}^{t} \mathrm{d}\tau \langle\sigma_+\sigma_-\rangle_\tau$. Величина $\langle\hat{N}_r^2\rangle$ описується рівнянням руху:

$$\langle\hat{N}_r^2\rangle = \frac{\Gamma^2}{2}\int_{t_0}^{t}\mathrm{d}\tau\int_{t_0}^{\tau}\mathrm{d}\tau'\langle S(\tau,\tau')\rangle + N_r, \tag{6}$$

де $\langle S(\tau,\tau')\rangle = \langle\sigma_+(\tau')\sigma_+(\tau)\sigma_-(\tau)\sigma_-(\tau')\rangle$.

Для довгих часів еволюції системи виконується співвідношення $\hat{N}_l + \hat{N}_r = \hat{N}_l(t_0)$, що дає $\langle\delta\hat{N}_l^2\rangle_\infty = \langle(\hat{N}_l|_{t_0} - \hat{N}_r)^2\rangle_\infty - (N_l|_{t_0} - N_r)^2$. Статистика відбитих фотонів визначається першим доданком у правій частині рівняння (6). Якщо значення цього доданку відмінне від $\langle N_r^2\rangle$, то відбиті фотони вже не описуються пуассонівською статистикою. На Рис. 2(а) та 2(б) показані *переходи від субпуассонівської до суперпуассонівської статистики* для певних значень середньої кількості фотонів у вхідному імпульсі та швидкості спонтанного розпаду збудженого стану кубіта у хвилевід. Рисунки 2(в) та 2(г) демонструють, що при збільшенні Γ, дисперсія кількості відбитих фотонів стає при будь-яких значеннях N_0 меншою за їхню середню кількість $\langle\delta\hat{N}_r^2\rangle < N_r$. Це відповідає субпуассонівській статистиці. Отже, контролюючи взаємодію між кубітом та модою хвилеводу, можна контролювати статистику випромінювання, що відбилось від кубіта. Це означає, що дворівневий атом можна використовувати як *регульоване джерело суб- чи суперпуассонівського світла*. При $N_0 \gg 1$ статистика випромінювання, що пройшло, подібна до статистики вхідного випромінювання, тобто воно є майже когерентним. Це пояснюється тим, що дворівневий атом (кубіт) може поглинути тільки один квант (фотон), тобто є *нелінійною системою з насиченням*. Саме тому лише невелика кількість фотонів із вхідного імпульсу поглинається та перевипромінюється кубітом.

Підрозділ 1.6 підсумовує результати **першого розділу**.

У **другому розділі** вивчається динаміка розсіяння одно- та двофотонних хвильових пакетів на дворівневому атомі (кубіті). Для опису цієї системи використовується гамільтоніан (2).

У ***підрозділі 2.2*** наводиться визначення функції (оператора) розподілу фотонів у фазовому (координатно-імпульсному просторі) та її основні властивості.

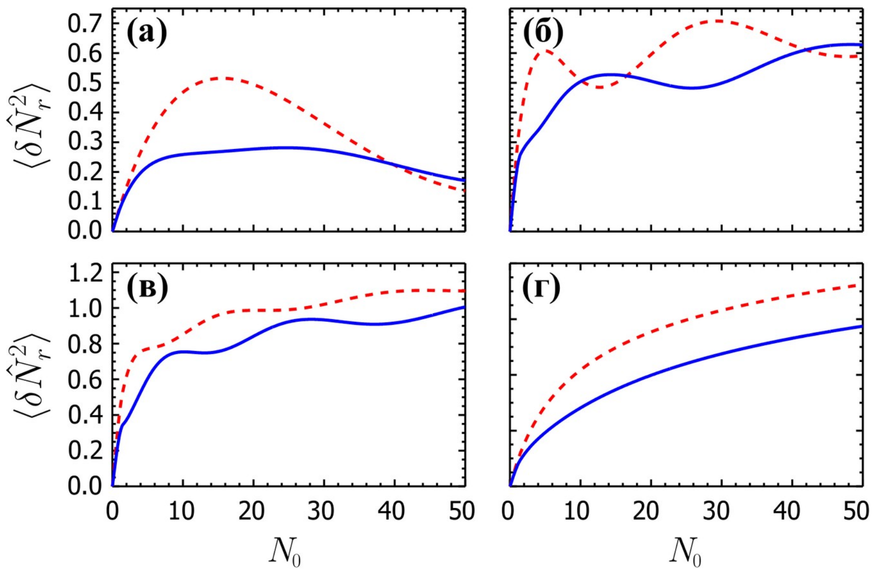

Рис. 2. Залежність дисперсії кількості фотонів, що відбились, від середньої кількості фотонів у вхідному хвильовому пакеті для різних значень Г. Суцільні лінії – значення $\langle \hat{N}_r^2 \rangle$, штриховані лінії відповідають дисперсії у випадку пуассонівської статистики фотонів. Параметри системи такі: $\Delta_{\rm a} = 0$, $x_0/w = -10$, (а) $\Gamma\tau_{\rm p} = 1/10$, (б) $\Gamma\tau_{\rm p} = 1/2$, (в) $\Gamma\tau_{\rm p} = 1$, та (г) $\Gamma\tau_{\rm p} = 10$.

В одновимірному випадку функція розподілу фотонів визначається як:

$$\hat{f}(x,p,t) = \frac{1}{2\pi}\int {\rm d}k\, {\rm e}^{-{\rm i}kx} \hat{A}^\dagger_{p+k/2}\hat{A}_{p-k/2}, \tag{7}$$

де A_p – оператор знищення фотона з хвильовим вектором (імпульсом) p. Після інтегрування функції розподілу по (конфігураційному) простору одержимо оператор густини фотонів у імпульсному (частотному) просторі (спектр) $\int {\rm d}x\, \hat{f}(x,p,t) = A_p^\dagger(t)A_p(t) \equiv \hat{n}(p,t)$. Проінтегрувавши функцію розподілу по імпульсах (хвильових векторах) фотонів, отримаємо оператор просторової густини фотонів $\int {\rm d}p\, \hat{f}(x,p,t) = \hat{\varrho}(x,t)$. Інтеграл від функції розподілу по усьому фазовому *(x,p)*-простору відповідає оператору кількості фотонів $\int {\rm d}x \int {\rm d}p\, \hat{f}(x,p,t) = \int {\rm d}x \hat{\varrho}(x,t) = \int {\rm d}p \hat{n}(p,t) = \hat{N}_{\rm ph}(t)$.

У ***підрозділі 2.3*** досліджується взаємодія кубіта з хвильовим пакетом у однофотонному стані. В початковий момент часу ($t = t_0$), система знаходиться в стані з одним збудженням (фотоном) у хвилеводі та кубітом в основному стані: $|1_l\rangle = \int {\rm d}p\, \alpha_p\, l_p^\dagger(t_0)|\varnothing\rangle$, де α_p – спектральний розподіл вхідного імпульсу, який моделюється гауссіаном (4). Отримано точні аналітичні вирази для функції розподілу розсіяних фотонів. Функція розподілу фотонів у області простору $x > 0$ (фотони, що пройшли кубіт) має такий вигляд:

$$\langle 1_l|f_l(x,p,t)|1_l\rangle = \frac{w}{2\pi\sqrt{\pi}}\int {\rm d}k {\rm e}^{-{\rm i}kX_l(t)}{\rm e}^{-w^2(p^2+k^2/4)} \times \left[1 - \frac{\Gamma}{2}\frac{\Gamma/2 + {\rm i}kv_g}{(\Delta_{\rm a} - pv_g)^2 - (kv_g - {\rm i}\Gamma)^2/4}\right], \tag{8}$$

де $X_l(t) = x - x_0 - v_g(t - t_0)$. Функція розподілу відбитих фотонів ($x < 0$) записується як

$$\langle 1_l|f_r(x,p,t)|1_l\rangle = \frac{w\Gamma^2}{8\pi\sqrt{\pi}}\int {\rm d}k {\rm e}^{-{\rm i}kX_r(t)}\frac{{\rm e}^{-w^2(p^2+k^2/4)}}{(\Delta_{\rm a} + pv_g)^2 - (kv_g + {\rm i}\Gamma)^2/4}, \tag{9}$$

де $X_r(t) = x + x_0 + v_g(t - t_0)$.

Функції розподілу розсіяних фотонів $\langle 1_l|f_{l,r}(x,p,t)|1_l\rangle$, обчислені для різних параметрів системи, показані на Рис. 3. Результати обчислень демонструють, що на

$$\langle 1_l|\hat{f}_{l,r}(x,p)|1_l\rangle$$

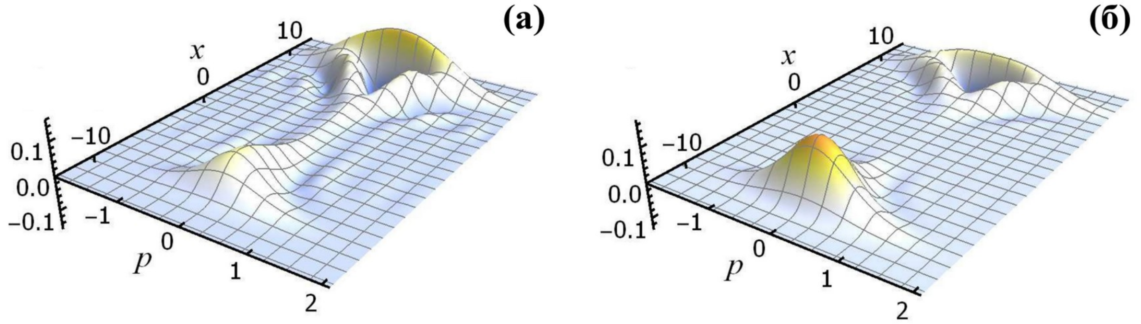

Рис. 3. Розподіли густини фотонів у фазовому просторі $\langle 1_l|f_l(x,p,t)|1_l\rangle$ $(x>0)$ та $\langle 1_l|f_r(x,p,t)|1_l\rangle$ $(x<0)$ для $\Delta_{\rm a}=0$, $\Gamma=1$, та $x_0=-10$. Розподіли обчислювались при $t=20$. Величини x, p, t, та Γ наведено в одиницях $w, 1/w, \tau_{\rm p}$, та $1/\tau_{\rm p}$, відповідно.

відміну від початкового розподілу фотонів, який має всюди позитивні значення, функція розподілу фотонів, що пройшли, $\langle f_l(x,p,t)\rangle$, має область *від'ємних значень*. Отже, фізична величина $\langle f_{l,r}(x,p,t)\rangle$ є розподілом густини *квазіймовірності* знаходження фотона у точці *(x,p)*-простору. Від'ємні значення функції розподілу утворюються внаслідок інтерференції вхідного поля та поля, яке перевипромінює кубіт. Зазначимо, що взаємодія між кубітом та фотоном найбільш ефективна поблизу значень хвильового вектора $p=0$, тобто там, де виконуються умови резонансу. Мінімум функції розподілу фотонів, що пройшли кубіт, спостерігається саме при цьому значенні p, тоді як «крила» початкового розподілу проходять кубіт без істотних змін. Появу від'ємних значень функції розподілу розсіяних фотонів також можна пояснити *антикореляцією* станів кубіта та поля хвилевода. Коли кубіт у збудженому стані $|e\rangle$, тобто поглинув фотон, поле хвилевода буде у вакуумному стані, оскільки інших збуджень у системі немає. У протилежному випадку, коли кубіт знаходиться в основному стані $|g\rangle$, у хвилеводі знаходиться один фотон.

У ***підрозділі 2.4*** розглядається розсіяння двофотонних хвильових пакетів на кубіті, що в початковий момент часу знаходиться в основному стані $|g\rangle$. Вхідний двофотонний імпульс складається з однофотонних пакетів зі спектральними розподілами α_p та β_p. Вважаємо, що $\beta_p=\alpha_p{\rm e}^{{\rm i}pL}$, де L – відстань між однофотонними імпульсами. Початковий стан системи задається як $|2_{\alpha\beta}\rangle=\nu\, a_\beta^\dagger\, a_\alpha^\dagger|\varnothing\rangle$, де $a_\alpha^\dagger=\int {\rm d}p\alpha_p a_p^\dagger$ – оператор народження фотона зі спектральним розподілом α_p. Параметр $\nu=1/\sqrt{1+|\chi|^2}$ – константа нормування, де $\chi=\int {\rm d}p\alpha_p^\dagger\beta_p$ – інтеграл перекриття вхідних однофотонних хвильових пакетів. Для гауссового спектрального розподілу (4) маємо $\nu=1/\sqrt{1+e^{-L^2/w^2}}$.

У ***підрозділах 2.4.1*** та ***2.4.2*** наводиться детальне виведення рівнянь, що описують динаміку населеності збудженого стану кубіта та еволюцію функції розподілу фотонів у фазовому просторі. Обчислення функції розподілу фотонів після взаємодії з кубітом для різних значень параметрів L та Γ показують, що функція розподілу фотонів, що пройшли кубіт $(x>0)$, має виражений «провал», в якому функція розподілу може набувати від'ємних значень. Аналогічно до випадку розсіяння однофотонних хвильових пакетів, який вивчався у частині 2.4, ця особливість функції розподілу фотонів також є наслідком антикореляції між станами поля хвилевода та

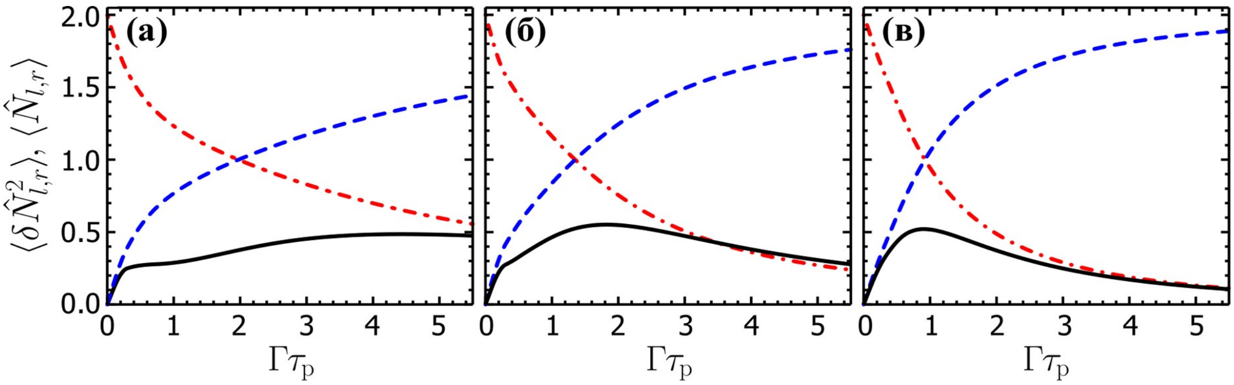

Рис. 4. Залежність дисперсії кількості фотонів, що розсіялись на кубіті (суцільні чорні лінії) та середньої кількості фотонів, що відбились (штрихові сині лінії) та пройшли (штрих-пунктирні червоні лінії), від Γ для різних значень L у резонансному випадку $\Delta_\mathrm{a} = 0$: (а) $L = 0$, (б) $L = 2w$, та (в) $L = 5w$.

станом кубіта. У випадку, коли однофотонні компоненти вхідного двофотонного імпульсу сильно перекриваються ($L < 2w$), «провал» функції розподілу є менш вираженим, якщо порівнювати з випадком однофотонного вхідного стану. При збільшенні Γ від'ємні області функції розподілу зникають, тоді як для вхідного однофотонного стану такі області виникають за будь-яких значень Γ.

У ***підрозділі 2.4.4*** розглядаються статистичні властивості розсіяних фотонів. Для цього, як і в **першому розділі**, визначається дисперсія кількості розсіяних фотонів $\langle \delta \hat{N}_\mu^2 \rangle_\infty = \langle \hat{N}_\mu^2 \rangle_\infty - \langle \hat{N}_\mu \rangle_\infty^2$, де $\mu \in \{l, r\}$, а величини $\langle \hat{N}_\mu^2 \rangle$ та $\langle \hat{N}_\mu \rangle = N_\mu$ обчислюються у довгочасовій границі (тобто, коли $t_\infty \gg (t_0 + |x_0|/v_g) + \tau_\mathrm{p} + \Gamma^{-1}$). Для вхідного стану з визначеною кількістю фотонів маємо таку властивість $\langle \delta \hat{N}_l^2 \rangle_\infty = \langle \delta \hat{N}_r^2 \rangle_\infty$. Для величини $\langle \delta \hat{N}_r^2 \rangle$ виконується співвідношення

$$\langle \hat{N}_r^2 \rangle = \frac{\Gamma^2}{2} \int_0^t \mathrm{d}\tau \int_0^\tau \mathrm{d}\tau' \, \left| \langle \varnothing | \sigma_-(\tau) \, \sigma_-(\tau') | 2 \rangle \right|^2 + N_r. \tag{10}$$

Результати обчислень, представлені на Рис. 4, показують, що при збільшенні зв'язку між кубітом та модою хвилеводу середня кількість відбитих фотонів N_r збільшується. Така закономірність стає більш вираженою при збільшенні відстані між однофотонними компонентами вхідного імпульсу L. Дисперсія кількості фотонів, що відбились від кубіта, менша за їхню середню кількість для усіх значень Γ та L, що вказує на субпуассонівську статистику. Ті ж фотони, що пройшли, можуть мати як супер- так і субпуассонівську статистику залежно від значень параметрів Γ та L.

Результати **другого розділу** підсумовуються у ***підрозділі 2.5***.

У **третьому розділі** вивчається поширення одно- та двофотонних хвильових пакетів у хіральному (однонаправленому) хвилеводі та їхнє розсіяння на локалізованому випромінювачі, який складається з одномодового резонатора, з’єднаного з дворівневим атомом (кубітом). Детальне обговорення математичної моделі системи наводиться в ***підрозділі 3.2.*** Система хвилевід-резонатор-кубіт моделюється таким гамільтоніаном:

$$\hat{\mathcal{H}} = \overbrace{\omega_\mathrm{c} \, a^\dagger a + \omega_\mathrm{a} \, \sigma_+ \sigma_- + g \left(a^\dagger \sigma_- + \sigma_+ a \right)}^{\hat{\mathcal{H}}_\mathrm{JC}} + \overbrace{\int_0^\infty \mathrm{d}\omega \, \omega \, b_\omega^\dagger b_\omega}^{\hat{\mathcal{H}}_\mathrm{w}} + \overbrace{f \int_0^\infty \mathrm{d}\omega \left(b_\omega^\dagger a + a^\dagger b_\omega \right)}^{\hat{\mathcal{H}}_\mathrm{I}}. \tag{11}$$

Перші три доданки у гамільтоніані (12) описують систему резонатор-кубіт та утворюють гамільтоніан моделі *Джейнса-Каммінґса*. Перший доданок у $\hat{\mathcal{H}}_{\mathrm{JC}}$ описує вільну моду резонатора з частотою ω_{c}, де a ($a^\dagger$) – оператор знищення (створення) фотона у моді резонатора. Другий доданок описує дворівневий атом (кубіт) з частотою переходу ω_{a} між основним $|g\rangle$ та збудженим $|e\rangle$ станами. Гамільтоніан взаємодії резонатора з кубітом, представлений третім доданком у (12), записаний у наближенні обертової хвилі. Отже, мають виконуватись критерії $|\Delta_{\mathrm{a}}| \ll \omega_{\mathrm{a}} + \omega_{\mathrm{c}}$, $g \ll \{\omega_{\mathrm{c}}, \omega_{\mathrm{a}}\}$, де $\Delta_{\mathrm{a}} = \omega_{\mathrm{a}} - \omega_{\mathrm{c}}$ – розстройка між частотами кубіта та резонатора, g – константа зв'язку між резонатором та кубітом. Доданок $\hat{\mathcal{H}}_{\mathrm{w}}$ у (12) описує континуум незалежних бозонних мод, що моделює хвилевід. Оператор b_ω ($b_\omega^\dagger$) знищує (створює) у хвилеводі фотон з енергією ω. Взаємодія хвилевода з резонатором описується доданком $\hat{\mathcal{H}}_{\mathrm{I}}$, де f – параметр зв'язку хвилевода з модою резонатора. Використовуючи гамільтоніан (12) у ***підрозділі 3.2*** виводяться рівняння руху для введених операторів.

У ***підрозділі 3.3*** розглядається взаємодія системи резонатор-кубіт із вхідним імпульсом у однофотонному стані. В цьому випадку часозалежна хвильова функція системи запишеться як $|\Psi_1(t)\rangle = \left[A^g(t)a^\dagger + A^e(t)\sigma_+ + \int \mathrm{d}\omega B_\omega(t) b_\omega^\dagger\right]|\varnothing\rangle$, де $|\varnothing\rangle = |\varnothing_{\mathrm{w}}\rangle|\varnothing_{\mathrm{JC}}\rangle$ означає вакуумний стан всієї системи, тобто стан без збуджень і в хвилеводі і в системі резонатор-кубіт; $B_\omega(t)$ – однофотонний розподіл густини амплітуди, $A^g(t)$ – амплітуда стану системи з кубітом у основному стані та з полем резонатора у однофотонному стані, $A^e(t)$ – амплітуда стану системи, в якому кубіт знаходиться у збудженому стані, а поле хвилевода у вакуумному стані. Початковий стан системи: $|\Psi_1^{\mathrm{in}}\rangle = |\psi_1^{\mathrm{in}}\rangle|\varnothing_{\mathrm{JC}}\rangle$, де $|\psi_1^{\mathrm{in}}\rangle$ – стан вхідного фотона, який виражається як $|\psi_1^{\mathrm{in}}\rangle = \int \mathrm{d}\omega\, \xi_\omega\, b_\omega^\dagger |\varnothing_{\mathrm{w}}\rangle$, де ξ_ω – спектральний розподіл вхідного хвильового пакета. Використовуючи рівняння руху для операторів, одержані у ***підрозділі 3.2***, отримується система рівнянь руху для амплітуд ймовірностей, які входять в одночастинкову хвильову функцію $|\Psi_1(t)\rangle$. Ця система рівнянь розв’язана аналітично.

Взаємодія двофотонних хвильових пакетів із системою резонатор - атом розглядається у ***підрозділі 3.4***. У ***підрозділі 3.4.1*** записується залежна від часу хвильова функція системи у такому вигляді:

$$|\Psi_2(t)\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} \iint \mathrm{d}\omega\, \mathrm{d}\omega'\, \Phi_{\omega,\omega'}(t)\, b_\omega^\dagger b_{\omega'}^\dagger |\varnothing\rangle + \int \mathrm{d}\omega \left[X_\omega^g(t)\, b_\omega^\dagger a^\dagger + X_\omega^e(t)\, b_\omega^\dagger \sigma_+\right]|\varnothing\rangle + \left[\frac{1}{\sqrt{2}} Z^g(t)\left(a^\dagger\right)^2 + Z^e(t)\,\sigma_+ a^\dagger\right]|\varnothing\rangle. \tag{12}$$

Перший доданок у (14) описує стан з двома фотонами у хвилеводі, де $\Phi_{\omega,\omega'}(t)$ – залежний від часу двофотонний спектральний розподіл. Величину $|\Phi_{\omega,\omega'}(t)|^2$ називаємо двофотонним спектром, який визначає спільний розподіл ймовірностей знаходження у хвилеводі пари фотонів з частотами ω та ω' у момент часу t. Амплітуди ймовірностей $X_\omega^{g,e}(t)$ відповідають станам системи, в яких і хвилевід і система резонатор-кубіт містять по одному збудженню. Функції $Z^{g,e}(t)$ – амплітуди ймовірностей станів, в яких поле хвилевода знаходиться у вакуумному стані, а система резонатор-кубіт містить два збудження. Індекси g та e відповідають стану кубіта.

Початковий стан системи у випадку вхідного двофотонного хвильового пакету записується як $|\Psi_2^{\rm in}\rangle = |\psi_2^{\rm in}\rangle|\varnothing_{\rm JC}\rangle$, де $|\psi_2^{\rm in}\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}\iint {\rm d}\omega\, {\rm d}\omega' \Phi^{\rm in}_{\omega,\omega'}\, b^\dagger_\omega b^\dagger_{\omega'}|\varnothing_{\rm w}\rangle$, а $\Phi^{\rm in}_{\omega,\omega'}$ – двофотонний спектральний розподіл вхідного хвильового пакету. Тут вважаємо, що вхідний хвильовий пакет утворений парою нерозрізненних фотонів з однофотонним спектральним розподілом ξ_ω. У цьому випадку функцію $\Phi^{\rm in}_{\omega,\omega'}$ можна представити добутком однофотонних спектральних розподілів $\Phi^{\rm in}_{\omega,\omega'} = \xi_\omega\, \xi_{\omega'}$.

Використовуючи рівняння руху операторів, отримані у *підрозділі 3.2*, у ***підрозділі 3.4.2*** виводяться рівняння еволюції для амплітуд ймовірностей у хвильовій функції (14). Систему рівнянь еволюції розв’язано чисельно та аналітично. Деталі розв’язання наведені в ***Додатку А***. Для обчислень однофотонний спектральний розподіл вхідного хвильового пакету ξ_ω моделюється лоренцівською функцією

$$\xi_\omega = \sqrt{\frac{\gamma_0}{2\pi}}\frac{{\rm e}^{{\rm i}(\omega-\omega_0)t_0}}{(\omega-\omega_0)+{\rm i}\gamma_0/2}, \tag{13}$$

де t_0 – момент часу, коли імпульс досягає резонатора. Вважаємо, що $t_0 = 0$. Параметр γ_0 – ширина спектру (*bandwidth*) вхідного хвильового пакету.

У ***підрозділі 3.5*** вивчається динаміка населеності резонатора та кубіта. Розрахунки показують, що коротші вхідні імпульси (більші значення γ_0/κ) ефективніше збуджують і резонатор, і кубіт. Населеності резонатора та кубіта є осцилюючими завдяки обміну збудженнями між ними. Для часів, довших за тривалість вхідного хвильового пакету $t > \tau_{\rm p}$, населеності резонатора та кубіта спадають приблизно як $\propto {\rm e}^{-\kappa t}$. У ***підрозділі 3.5*** також обчислюються ймовірності знайти систему резонатор-кубіт у стані з певною кількістю збуджень $p^{(j)}_{\rm JC}(t)$ ($j \le 2$). Ймовірності знайти одне та два збудження в системі резонатор-кубіт у довільний момент часу t визначаються виразами $p^{(1)}_{\rm JC}(t) = \int {\rm d}\omega |X^g_\omega(t)|^2 + \int {\rm d}\omega |X^e_\omega(t)|^2$ та $p^{(2)}_{\rm JC}(t) = |Z^g(t)|^2 + |Z^e(t)|^2$. Динаміка ймовірностей $p^{(1)}_{\rm JC}$ та $p^{(2)}_{\rm JC}$, показана на Рис. 5, свідчить, що ймовірність знаходження двох збуджень у системі резонатор-кубіт значно пригнічена у порівнянні з випадком, де резонатор від'єднаний ($g = 0$) від кубіта. Кубіт привносить *нелінійність у* систему, оскільки не може містити більше одного збудження. Ця нелінійність породжує ефект *фотонної блокади*, коли наявність збудження в системі зменшує ймовірність поглинання ще одного кванта.

У ***підрозділі 3.6*** розглядається довгочасова еволюція системи, коли всі процеси розсіяння завершились. Стан системи у такому випадку запишеться як $|\Psi_2^{\rm out}\rangle = |\psi_2^{\rm out}\rangle|\varnothing_{\rm JC}\rangle$, де $|\psi_2^{\rm out}\rangle$ – стан розсіяних фотонів. Останній задається як $|\psi_2^{\rm out}\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}\iint {\rm d}\omega\, {\rm d}\omega'\, {\rm e}^{-{\rm i}(\omega+\omega')t}\Phi^{\rm out}_{\omega,\omega'}\, b^\dagger_\omega b^\dagger_{\omega'}|\varnothing_{\rm w}\rangle$. Функція $\Phi^{\rm out}_{\omega,\omega'}$ – це двофотонний спектральний розподіл розсіяного хвильового пакета, який має такий вигляд

$$\Phi^{\rm out}_{\omega,\omega'} = \overbrace{{\rm e}^{{\rm i}(\Theta_\omega+\Theta_{\omega'})}\xi_\omega\xi_{\omega'}}^{\phi^{\rm el}_{\omega,\omega'}} + \overbrace{F_{\omega,\omega'}\prod_{\mu=\pm}\xi_{\omega+\omega'-\mathcal{E}^\mu_1}}^{\phi^{\rm inel}_{\omega,\omega'}}, \tag{14}$$

де $F_{\omega,\omega'}$ дорівнює

$$F_{\omega,\omega'} = 16\pi^2 f^4 g^4\left[\frac{1}{2} + \frac{\omega+\omega'-\mathcal{E}^+_1-\mathcal{E}^-_1}{\omega+\omega'+{\rm i}\gamma_0}\right]\prod_{\mu=\pm}\frac{1}{(\omega-\mathcal{E}^\mu_1)(\omega'-\mathcal{E}^\mu_1)(\omega+\omega'-\mathcal{E}^\mu_2)}.$$

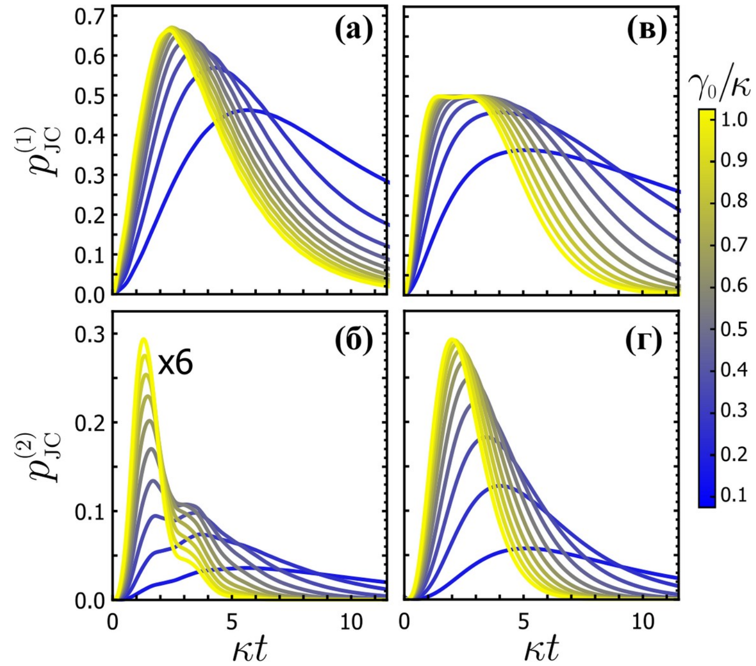

Рис. 5. На графіках (а) та (б) показано, як ймовірності знаходження, відповідно, одного та двох збуджень у системі резонатор-кубіт залежать від γ_0/κ при $g = 5\kappa$. На графіку (б) відповідні ймовірності домножені на 6 для кращої візуалізації. На графіках (в) та (г) показані аналогічні залежності коли взаємодії між резонатором та кубітом немає ($g = 0$). Решта параметрів системи такі: $g = 5\kappa$, $\Delta_{\mathrm{a}} = 0$, та $\omega_0 = E_1^+$.

Доданок $\phi^{\mathrm{el}}_{\omega,\omega'}$ у виразі (14) описує *нескорельоване* пружне розсіяння двох фотонів у результаті чого енергія кожного з них не змінюється, а $\phi^{\mathrm{inel}}_{\omega,\omega'}$ описує непружне розсіяння, в результаті якого енергія кожного з фотонів змінюється. Сумарна енергія фотонів при цьому зберігається. Комплексні одно- та двофотонні резонансні частоти відкритої системи резонатор-кубіт $\mathcal{E}^{\pm}_{1,2} = E^{\pm}_{1,2} - \mathrm{i}\Gamma^{\pm}_{1,2}/2$ визначаються як $\mathcal{E}^{\pm}_n = n\widetilde{\omega}_{\mathrm{c}} + (\widetilde{\Delta}_{\mathrm{a}} \pm \mathcal{R}_n)/2$, $\mathcal{R}_n = \sqrt{4ng^2 + \widetilde{\Delta}^2_{\mathrm{a}}}$, де $\widetilde{\omega}_{\mathrm{c}} = \omega_{\mathrm{c}} - \mathrm{i}\kappa/2$, $\widetilde{\Delta}_{\mathrm{a}} = \omega_{\mathrm{a}} - \widetilde{\omega}_{\mathrm{c}}$, та $\kappa = 2\pi f^2$ – швидкість витікання фотона з резонатора.

Спектр розсіяних фотонів досліджується у ***підрозділі 3.7***. Розподіл спектральної густини (спектр) розсіяних фотонів визначається як $S^{\mathrm{out}}_{\omega} = \langle\Psi^{\mathrm{out}}_2|b^{\dagger}_{\omega}b_{\omega}|\Psi^{\mathrm{out}}_2\rangle$. Інтегрування $S^{\mathrm{out}}_{\omega}$ по всіх частотах дає середню кількість фотонів. Оскільки кількість фотонів у системі зберігається, то $\int \mathrm{d}\omega\, S^{\mathrm{out}}_{\omega} = \int \mathrm{d}\omega\, S^{\mathrm{in}}_{\omega} = 2$, де S^{in}_{ω} — спектр вхідного хвильового пакету $S^{\mathrm{in}}_{\omega} = \langle\Psi^{\mathrm{in}}_2|b^{\dagger}_{\omega}b_{\omega}|\Psi^{\mathrm{in}}_2\rangle = 2|\xi_{\omega}|^2$. В системі, в якій кубіт від'єднаний від резонатора ($g = 0$) $S^{\mathrm{out}}_{\omega} = S^{\mathrm{in}}_{\omega}$, а отже, спектр хвильового пакету, що розсіявся, ідентичний спектру вхідного хвильового пакету. При ввімкненій взаємодії між резонатором та кубітом ($g \neq 0$) спектр розсіяного хвильового пакета відрізняється від спектра вхідного. Обчислення показують, що найбільш виразна модифікація спектра вихідного хвильового пакету відбувається коли частота ω_0 близька до однофотонних резонансних частот системи резонатор-кубіт: $\omega_0 \approx E^{\pm}_1$.

У ***підрозділі 3.8*** продемонстровано, що стан пари нескорельованих фотонів після розсіяння на резонаторі, що взаємодіє з дворівневим атомом (кубітом), є *частотно-заплутаним* (*frequency-entangled*). Нелінійність системи резонатор-кубіт породжує ефективну *фотон-фотонну взаємодію*, що призводить до частотного заплутування розсіяних фотонів. Частотне заплутування фотонів можна кількісно визначити, використовуючи *розклад Шмідта* (*Schmidt decomposition*) для спектрального розподілу розсіяного хвильового пакету $\Phi^{\mathrm{out}}_{\omega,\omega'} = \sum_{j\geq 1}\sqrt{\lambda_j}\,\varphi_{j,\omega}\widetilde{\varphi}_{j,\omega'}$.

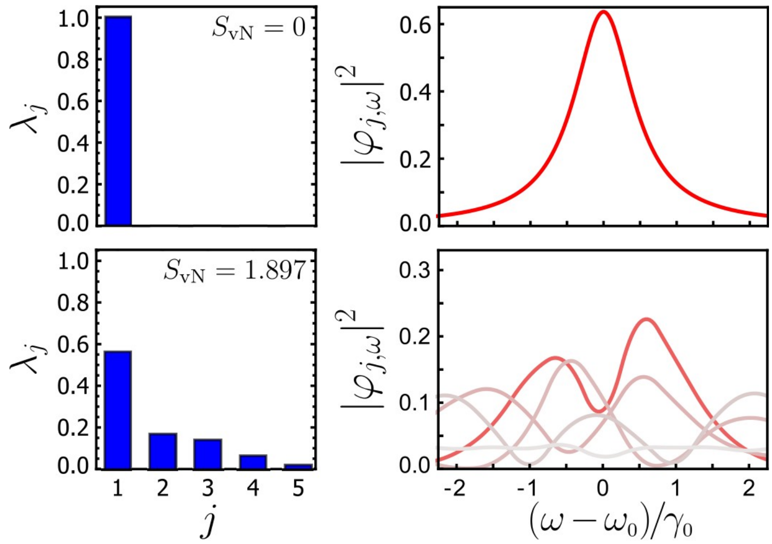

Рис. 6. Перші п'ять коефіцієнтів розкладу Шмідта та спектр мод розкладу $|\varphi_{j,\omega}|^2$ (насиченість лінії відповідає значенню коефіцієнта розкладу λ_j) для випадку $g=0$ *(верхній ряд)* та $g=10\kappa$ *(нижній ряд)*. Решта параметрів системи такі: $\Delta_{\mathrm{a}}=0, \gamma_0/\kappa=0.2, \omega_0=E^+$.

Коефіцієнти розкладу та спектральні розподіли визначаються розв'язком задачі на власні значення/функції: $\int \mathrm{d}\nu\, K_{\nu,\omega}\varphi_{j,\nu} = \lambda_j\varphi_{j,\omega}$, $\int \mathrm{d}\nu\, \widetilde{K}_{\nu,\omega}\widetilde{\varphi}_{j,\nu} = \lambda_j\widetilde{\varphi}_{j,\omega}$, де $K_{\nu,\omega} = \int \mathrm{d}\nu' \left(\Phi^{\mathrm{out}}_{\nu,\nu'}\right)^* \Phi^{\mathrm{out}}_{\omega,\nu'}$ та $\widetilde{K}_{\nu,\omega} = \int \mathrm{d}\nu' \left(\Phi^{\mathrm{out}}_{\nu',\nu}\right)^* \Phi^{\mathrm{out}}_{\nu',\omega}$. Задача на власні значення/функції розв'язувалась числовими методами. Якщо всі коефіцієнти розкладу Шмідта нулі, окрім першого, це означає, що двофотонний спектральний розподіл факторизується і фотони не заплутані. У іншому разі, такий стан є заплутаним. Як міру заплутаності, використано *ентропію заплутаності* S_{vN}. Для заплутаних станів $S_{\mathrm{vN}}>0$, тоді як $S_{\mathrm{vN}}=0$ вказує на те, що такий стан є сепарабельним. Ентропію заплутаності можна виразити через коефіцієнти розкладу Шмідта як $S_{\mathrm{vN}} = -\sum_{j\geq 1}\lambda_j \log_2 \lambda_j$. Обчислення показують, що при увімкненій взаємодії резонатора з кубітом ($g>0$) вихідні фотони є *частотно-заплутаними,* оскільки $\lambda_{j\geq 2}>0$ та $S_{\mathrm{vN}}>0$. Цей результат проілюстровано на Рис. 6.

Висновки **третього розділу** наведені у ***підрозділі 3.9***.

У **четвертому розділі** досліджується *дисперсне зчитування* (*dispersive readout*) стану кубіта у граничному випадку вимірюючого хвильового пакету в однофотонному стані. ***Підрозділ 4.1*** містить стислий огляд реалізацій дисперсного вимірювання стану надпровідного кубіта. Обговорюються обмеження цих підходів, обговорюються переваги використання фоківських станів та фотодетекторів для зчитування кубіта. У ***підрозділі 4.2*** пояснюється фізичний принцип дисперсного зчитування. У ***підрозділі 4.3*** наводиться схема вимірювання. В цій схемі однофотонний хвильовий пакет $|1_\xi\rangle$ надходить по хвилеводу 1 до резонатора з частотою ω_{r} та з однаковою швидкістю $\kappa/2$ витікає до хвилеводів. Резонатор дисперсно взаємодіє з кубітом, в якому частота переходу між основним $|\downarrow\rangle$ та збудженим $|\uparrow\rangle$ станами дорівнює ω_{q}. Для приготування кубіта у збудженому стані використовується π-імпульс. До хвилеводу 2 під'єднаний *on-off* фотодетектор з квантовою ефективністю η. Однофотонний вхідний хвильовий пакет генерується в результаті спонтанного розпаду дворівневої системи, збудженої π-імпульсом.

У ***підрозділі 4.4*** модельний гамільтоніан, що описує систему, має вигляд

$$\hat{\mathcal{H}} = \hat{\mathcal{H}}_{\mathrm{q}} + \hat{\mathcal{H}}_{\mathrm{r}} + \hat{\mathcal{H}}_{\mathrm{qr}} + \sum_j \hat{\mathcal{H}}_{\mathrm{r}j} + \sum_j \hat{\mathcal{H}}_j, \qquad j\in\{1,2\}. \tag{15}$$

Перші три доданки в правій частині описують, відповідно, кубіт, резонатор, та взаємодію між ними. Гамільтоніан кубіта $\hat{\mathcal{H}}_{\mathrm{q}}$ записується як $\mathcal{H}_{\mathrm{q}} = \hbar\omega_{\mathrm{q}}\sigma_{\mathrm{z}}/2$. Гамільтоніан резонатора $\hat{\mathcal{H}}_{\mathrm{r}}$ має вигляд $\hat{\mathcal{H}}_{\mathrm{r}} = \hbar\omega_{\mathrm{r}}a^\dagger a$. Взаємодія кубіта та резонатора задається гамільтоніаном $\hat{\mathcal{H}}_{\mathrm{qr}} = \hbar g\sigma_{\mathrm{x}}(a + a^\dagger)$, де g — параметр зв'язку. Разом ці гамільтоніани описують квантову модель Рабі: $\hat{\mathcal{H}}_{\mathrm{R}} \equiv \hat{\mathcal{H}}_{\mathrm{q}} + \hat{\mathcal{H}}_{\mathrm{r}} + \hat{\mathcal{H}}_{\mathrm{qr}}$. Гамільтоніан $\hat{\mathcal{H}}_j$ описує поле у j-му хвилеводі та має вигляд $\hat{\mathcal{H}}_j = \hbar\int_0^\infty dk\omega_k b_{jk}^\dagger b_{jk}$, де b_{jk} ($b_{jk}^\dagger$) – оператор знищення (народження) фотона з хвильовим вектором k та частотою ω_k у j-му хвилеводі. Вважаємо, що обидва хвилеводи описуються одним дисперсійним співвідношенням $\omega_k = v_g k$, де v_g — швидкість поширення фотонів у хвилеводі. Гамільтоніан $\hat{\mathcal{H}}_{\mathrm{r}j}$ описує взаємодію між хвилеводами та резонатором. Він має такий вигляд: $\hat{\mathcal{H}}_{\mathrm{r}j} = \mathrm{i}\hbar\int_0^\infty \mathrm{d}k f_{jk}(a - a^\dagger)(b_{jk} + b_{jk}^\dagger)$. Далі вважаємо, що $(f_{1k} = f_{2k}) \equiv f_k$.

Розглядається випадок *дисперсної взаємодії* резонатора з кубітом $g \ll |\omega_{\mathrm{r}} - \omega_{\mathrm{q}}|$. Якщо $\omega_{\mathrm{q}} - \omega_{\mathrm{r}} \sim \omega_{\mathrm{q}} + \omega_{\mathrm{r}}$, то наближення обертової хвилі не працює. Вважаємо, що $\omega_{\mathrm{q}} \sim \omega_{\mathrm{r}}$ та є малий параметр $\Lambda^2 \ll 1$, де $\Lambda \equiv g/(\omega_{\mathrm{q}} + \omega_{\mathrm{r}})$. Отже, доданки $\propto (a^\dagger\sigma_+ + a\sigma_-)$ в $\hat{\mathcal{H}}_{\mathrm{R}}$ можна вважати малими збуренням. Гамільтоніан $\hat{\mathcal{H}}_{\mathrm{R}}$ наближено діагоналізується відомим в літературі унітарним перетворенням $U_{\mathrm{BS}} = \mathrm{e}^{-\Lambda(a^\dagger\sigma_+ - \sigma_- a)}$, яке породжує новий гамільтоніан $\hat{\mathcal{H}}_{\mathrm{R}} \to U_{\mathrm{BS}}^\dagger \hat{\mathcal{H}}_{\mathrm{R}} U_{\mathrm{BS}} = H_{\mathrm{q}}' + H_{\mathrm{qr}}' + H_{\mathrm{r}}' + O(\Lambda^2)$, де гамільтоніани резонатора H_{r}' та кубіта H_{q}' записуються у перетвореному базисі відповідно як $H_{\mathrm{r}}' = \hbar\left(\omega_{\mathrm{r}} + g\Lambda\sigma_{\mathrm{z}}\right)a^\dagger a$ та $H_{\mathrm{q}}' = \hbar\left(\omega_{\mathrm{q}} + g\Lambda\right)\sigma_{\mathrm{z}}/2$. Зсув $g\Lambda\sigma_{\mathrm{z}}$ у частоті резонатора називають *зсувом Блоха-Зіґерта*. Перетворений гамільтоніан взаємодії резонатора з кубітом записується як $H_{\mathrm{qr}}' = \hbar g(\sigma_+ a + a^\dagger\sigma_-)$. Повний гамільтоніан системи у новому базисі запишеться як

$$\hat{\mathcal{H}} \to \hat{\mathcal{H}}' = \hat{\mathcal{H}}_{\mathrm{q}} + \hat{\mathcal{H}}_{\mathrm{qr}}' + \hat{\mathcal{H}}_{\mathrm{r}}' + \sum_j \left(\hat{\mathcal{H}}_{\mathrm{r}j} + \hat{\mathcal{H}}_{\mathrm{q}j}' + \hat{\mathcal{H}}_j\right) + O(\Lambda^2), \tag{16}$$

де $\hat{\mathcal{H}}_{\mathrm{q}j}' = \hbar\Lambda\int_0^\infty \mathrm{d}k f_k\,\sigma_{\mathrm{y}}\left(b_{jk} + b_{jk}^\dagger\right)$. Якщо виконується критерій $\kappa, \kappa_q \ll \omega_{\mathrm{r}}, \omega_{\mathrm{q}}$, у $\hat{\mathcal{H}}_{\mathrm{q}j}'$ можна знехтувати доданками $\propto (b_{jk}^\dagger a^\dagger + b_{jk}a)$ та $\propto (b_{jk}^\dagger\sigma_+ + b_{jk}\sigma_-)$, що дасть $\hat{\mathcal{H}}_{\mathrm{q}j}' \approx \hat{\mathcal{H}}_{\mathrm{q}j}^{\mathrm{RWA}} = \mathrm{i}\hbar\Lambda\int_0^\infty \mathrm{d}k f_k\left(b_{jk}^\dagger\sigma_- - \sigma_+ b_{jk}\right)$. Параметр $\kappa = 4\pi f^2(\omega_{\mathrm{r}})/v_g$ – швидкість витікання фотона з резонатора, $\kappa_q = 4\pi f^2(\omega_{\mathrm{q}})/v_g$ – швидкість витікання фотона з резонатора на частоті кубіта. Для опису динаміки системи, використовуємо ефективний гамільтоніан

$$\hat{\mathcal{H}}' \to \hat{\mathcal{H}}_{\mathrm{RWA}}' = \hat{\mathcal{H}}_{\mathrm{q}} + \hat{\mathcal{H}}_{\mathrm{qr}} + \hat{\mathcal{H}}_{\mathrm{r}}' + \sum_j \left(\hat{\mathcal{H}}_{\mathrm{r}j} + \hat{\mathcal{H}}_{\mathrm{q}j}^{\mathrm{RWA}} + \hat{\mathcal{H}}_j\right). \tag{17}$$

Можна показати, що $[\hat{\mathcal{H}}_{\mathrm{RWA}}', \hat{\mathcal{N}}_{\mathrm{ex}}] = 0$, де $\hat{\mathcal{N}}_{\mathrm{ex}} = a^\dagger a + \sigma_+\sigma_- + \sum_j\int_0^\infty \mathrm{d}k b_{j,k}^\dagger b_{j,k}$ – оператор повної кількості збуджень в системі, а отже, кількість збуджень в системі є сталою. Використовуючи гамільтоніан $\hat{\mathcal{H}}_{\mathrm{RWA}}'$, у ***підрозділі 4.4.2*** виводяться рівняння руху операторів.

У ***підрозділі 4.5*** вводиться поняття контрасту зчитування. Результат вимірювання в нашій схемі визначається сигналом від *on-off* фотодетектора, під'єднаного до кінця другого хвилевода. Вважаємо, що коли детектор спрацював, то кубіт знаходиться у стані $|\downarrow\rangle$. Якщо ж детектор не спрацював, то це означає, що кубіт знаходиться у стані $|\downarrow\rangle$.

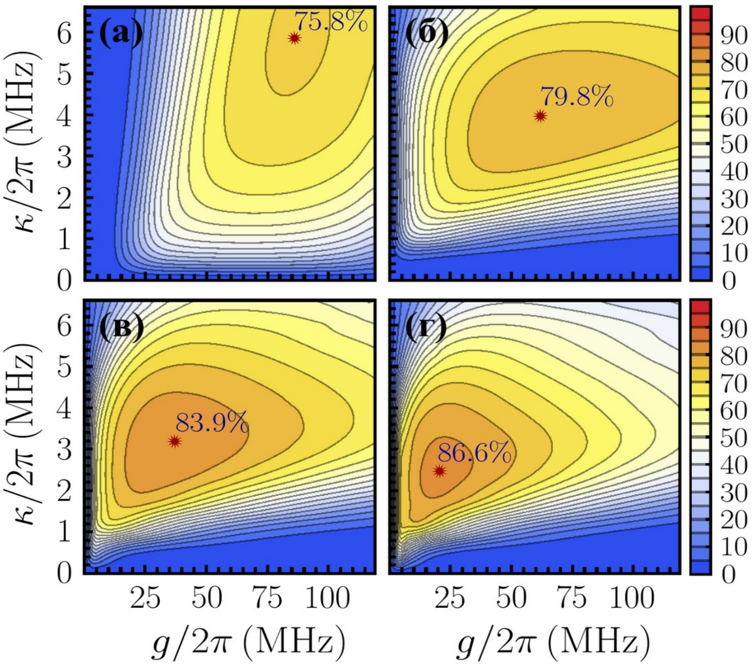

Рис. 7. Залежність контрасту зчитування від κ та g для різних довжин вхідних імпульсів: (а) $\tau_{\mathrm{p}} = 1\,\mu\mathrm{s}$, (б) $\tau_{\mathrm{p}} = 2\,\mu\mathrm{s}$, (в) $\tau_{\mathrm{p}} = 5\,\mu\mathrm{s}$, та (г) $\tau_{\mathrm{p}} = 10\,\mu\mathrm{s}$. Час вимірювання та тривалість вхідного імпульсу пов'язані як $t_{\mathrm{m}} = 6\tau_{\mathrm{p}}$. Частоти кубіта та резонатора $\omega_{\mathrm{q}} = 5.0\,\mathrm{GHz}$ та $\omega_{\mathrm{r}} = 4.09\,\mathrm{GHz}$. Фотодетектор вважаємо ідеальним $\eta = 1$. Зірочкою позначено положення максимального контрасту $C_{\max}$, який досягається для певних значень розстройки та тривалості вхідного імпульсу.

Контраст зчитування визначимо як $C = P_{\mathrm{cl}|\uparrow}[\xi(\omega)] - P_{\mathrm{cl}|\downarrow}[\xi(\omega)]$, де $P_{\mathrm{cl}|q}$ – ймовірність спрацьовування фотодетектора, якщо кубіт приготований у власному стані $|q\rangle$ ($q =\uparrow, \downarrow$), а резонатор опромінюється хвильовим пакетом зі спектральним розподілом $\xi(\omega)$. Вважаємо, що спектральний розподіл вхідного фотона $\xi(\omega)$ має лоренцівську форму (13). У просторі хвильових векторів фотонів розподіл виражається як $\xi'(k) = \xi(\omega/v_g)/\sqrt{v_g}$.

У ***підрозділі 4.6*** показано метод обчислення ймовірностей спрацьовування фотодетектора. У загальному випадку ймовірність спрацьовування *on-off* детектора з квантовою ефективністю η визначається як

$$P_{\mathrm{cl}}|_q = 1 - \left\langle : \exp(-\eta \hat{\mathcal{N}}_{\mathrm{tr}}) : \right\rangle_q = \sum_{n\geq 1} (-1)^{n+1} \frac{\eta^n}{n!} \left\langle : \hat{\mathcal{N}}_{\mathrm{tr}}^n : \right\rangle_q, \tag{18}$$

де :: означає нормальне впорядкування операторів, $\hat{\mathcal{N}}_{\mathrm{tr}} = \int_0^\infty \mathrm{d}k\, b_{2,k}^\dagger b_{2,k}$ – оператор кількості фотонів, що пройшли систему резонатор-кубіт та потрапили в другий хвилевід. Усереднення в (18) проводиться по початковому стану системи $|\Psi_q\rangle$.

Якщо кубіт приготовано у основному стані $|g\rangle$, то задача зводиться до випадку лише одного збудження, оскільки вхідний імпульс містить лише один фотон. У цьому випадку ймовірність спрацьовування детектора $P_{\mathrm{cl}}|_\downarrow$ виражається як

$$P_{\mathrm{cl}}|_\downarrow = \eta \int_0^\infty \mathrm{d}k\, \langle \Psi_\downarrow | b_{2,k}^\dagger b_{2,k} | \Psi_\downarrow \rangle, \tag{19}$$

де $|\Psi_\downarrow\rangle = |\downarrow\rangle|0^{\mathrm{r}}\rangle|1_\xi^{\mathrm{I}}\rangle|0^{\mathrm{II}}\rangle$ – початковий стан системи. У ***підрозділі 4.6.1*** детально описується метод обчислення $P_{\mathrm{cl}}|_\downarrow$. Якщо кубіт приготовано у збудженому стані $|e\rangle$, то це задача з двома збудженнями. Тут ймовірність спрацьовування фотодетектора визначається як

$$P_{\mathrm{cl}}|_\uparrow = \eta \int_0^\infty \mathrm{d}k\, \langle \Psi_\uparrow | b_{2,k}^\dagger b_{2,k} | \Psi_\uparrow \rangle - \frac{\eta^2}{2} \int_0^\infty \mathrm{d}k \int_0^\infty \mathrm{d}k'\, \langle \Psi_\uparrow | b_{2,k'}^\dagger b_{2,k}^\dagger b_{2,k} b_{2,k'} | \Psi_\uparrow \rangle, \tag{20}$$

де початковий стан системи: $|\Psi_\uparrow\rangle = |\varphi\rangle|1_\xi^{\mathrm{I}}\rangle|0^{\mathrm{II}}\rangle$, $|\varphi\rangle \equiv U_{\mathrm{BS}}|0^{\mathrm{r}}\rangle|\uparrow\rangle \approx |\uparrow\rangle|0^{\mathrm{r}}\rangle + \lambda|\downarrow\rangle|1^{\mathrm{r}}\rangle$. Деталі обчислення $P_{\mathrm{cl}}|_\uparrow$ наводяться у ***підрозділі 4.6.2***.

У ***підрозділі 4.7*** обговорюються результати обчислень залежностей контрасту зчитування від параметрів системи. Із загальних міркувань зроблено висновок, що для заданого часу вимірювання t_m та різниці частот кубіта та резонатора $\omega_\mathrm{q} - \omega_\mathrm{r}$ має існувати комбінація значень швидкості витікання фотона з резонатора κ та сили зв'язку між кубітом та резонатором g, коли досягається максимальне значення контрасту C_max. Для ілюстрації цього важливого висновку на Рис. 7 показані залежності контрасту зчитування від параметрів g та κ для деяких значень часу t_m. Обчислення також показують, що більший контраст досягається використанням довших імпульсів та більших значень різниці частот кубіта та резонатора.

Висновки **четвертого розділу** наведено у ***підрозділі 4.8***.

У **п'ятому розділі** розглядається новий квантово-класичний підхід для моделювання неадіабітичної електронно-ядерної динаміки в молекулярних системах. У ***підрозділі 5.2*** виводиться ефективний (*momentum-jump*) гамільтоніан молекулярної системи. Молекулярний гамільтоніан можна записати як $\hat{\mathcal{H}} = \hat{\mathcal{T}} + \hat{\mathcal{H}}_\mathrm{el}(\mathbf{R})$, де перший доданок – кінетична енергія ядер $\hat{\mathcal{T}} = \sum_\alpha \hat{p}_\alpha^2/(2M_\alpha)$, де $\hat{p}_\alpha = -\mathrm{i}\nabla_{R_\alpha}$ – оператор імпульсу, R_α означає α компоненту N-вимірного вектора ядерних координат $\mathbf{R} = (R_1, R_2, \ldots, R_{3N})$, де N – кількість атомів (ядер) у молекулі. Доданок $\hat{\mathcal{H}}_\mathrm{el}$ описує електронну підсистему молекули і включає кінетичну енергію та усі електрон-електронні та ядерно-ядерні взаємодії, які параметрично залежать від положення ядер $\mathbf{R}$. При використанні методів симуляції *ab-initio* неадіабатичної молекулярної динаміки «на льоту» (*on-the-fly*), енергетичні поверхні та вектори неадіабатичного зв'язку обчислюються для певного залежного від часу положення ядер $\bar{\mathbf{R}}_t$. За такого підходу, працюють з адіабатичними залежними від часу базисними станами $|n(t)\rangle$. Стан всієї системи $|\Psi(\mathbf{R},t)\rangle$ можна представити як суперпозицію цих станів $|\Psi(\mathbf{R},t)\rangle = \sum_n \psi_n(\mathbf{R},t)|n(t)\rangle$, де $\psi_n(\mathbf{R},t)$ – ядерна хвильова функція. Використовуючи цей розклад у часозалежному рівнянні Шрьодінгера $\mathrm{i}\partial_t|\Psi(t)\rangle = \hat{\mathcal{H}}|\Psi(t)\rangle$, отримаємо $\mathrm{i}\partial_t\psi_{n'}(\mathbf{R},t) = \sum_n h_{n'n}\psi_n(\mathbf{R},t)$, де $h_{n'n} = \langle n'|\hat{\mathcal{H}}|n\rangle - \mathrm{i}\langle n'|\partial_t n\rangle$. Цей результат приводить до гамільтоніану в калібровці довжини (*length-gauge Hamiltonian*)

$$\hat{\mathcal{H}}_\mathrm{lg} = \hat{\mathcal{T}} + \sum_{n,n'} \left[\mathrm{i}\langle n(t)|\partial_t n'(t)\rangle + U_{nn'}(t)\right] |n'(t)\rangle\langle n(t)|, \tag{21}$$

де $U_{nn'}(t) = \langle n(t)|\hat{\mathcal{H}}_\mathrm{el}(\mathbf{R})|n'(t)\rangle$. Якщо немає зовнішнього магнітного поля, то гамільтоніан $\hat{\mathcal{H}}_\mathrm{el}$ дійсний і $U_{nn'}(t) = U_{n'n}(t)$. Вважаємо, що хвильові функції ядер $\psi_n(\mathbf{R},t)$ сильно локалізовані поблизу центру хвильового пакету $\bar{\mathbf{R}}_t(t)$. Розкладемо електронний гамільтоніан $\hat{\mathcal{H}}_\mathrm{el}$ в околі точки $\bar{\mathbf{R}}_t$ до другого порядку та використаємо співвідношення $\hat{\mathcal{H}}_\mathrm{el}(\mathbf{R})|n(\mathbf{R})\rangle = E_n(\mathbf{R})|n(\mathbf{R})\rangle$ разом з теоремою Геллмана-Фейнмана отримаємо для $U_{nn'}(t)$ такий вираз

$$U_{nn'} = \delta_{nn'}\left[E_n(\bar{\mathbf{R}}_t) - \mathbf{F}_n(\bar{\mathbf{R}}_t)\cdot(\mathbf{R}-\bar{\mathbf{R}}_t)\right] + (1-\delta_{nn'})\Delta E_{nn'}(\bar{\mathbf{R}}_t)\mathbf{A}_{nn'}\cdot(\mathbf{R}-\bar{\mathbf{R}}_t), \tag{22}$$

де $\mathbf{A}_{nn'}(\mathbf{R}) \equiv \langle n(\mathbf{R})|\nabla_\mathbf{R} n'(\mathbf{R})\rangle$ – вектор неадіабатичного зв'язку, а $\mathbf{F}_n(\mathbf{r}) = -\nabla_\mathbf{r} E_n(\mathbf{r})$ – сила, яка діє на ядро на n-й енергетичній поверхні. Використовуючи вираз (22), перепишемо гамільтоніан (21) як $\hat{\mathcal{H}}_\mathrm{lg} = \hat{\mathcal{H}}_0 + \hat{\mathcal{V}}$, де діагональна частина $\hat{\mathcal{H}}_0$ записується як

$$\hat{\mathcal{H}}_0 = \hat{\mathcal{T}} + \sum_n \left[E_n(\bar{\mathbf{R}}_t) - \mathbf{F}_n(\bar{\mathbf{R}}_t)\cdot(\mathbf{R}-\bar{\mathbf{R}}_t)\right]|n\rangle\langle n|. \tag{23}$$

Недіагональна частина $\hat{\mathcal{V}}$ має такий вигляд

$$\hat{\mathcal{V}} = \mathrm{i}\sum_{n,n'} \bar{\mathbf{v}} \cdot \mathbf{A}_{nn'}(\bar{\mathbf{R}}_t)\left[1 + \mathrm{i}\Delta\mathbf{p}_{nn'} \cdot (\mathbf{R} - \bar{\mathbf{R}}_t)\right] |n'\rangle\langle n|, \tag{24}$$

де $\Delta E_{nn'}(\bar{\mathbf{R}}) = E_n(\bar{\mathbf{R}}) - E_{n'}(\bar{\mathbf{R}})$ та $\Delta\mathbf{p}_{nn'} = -\Delta E_{nn'}\mathbf{A}_{nn'}/(\mathbf{v}\cdot\mathbf{A}_{nn'})$. Оскільки ядерні стани локалізовані поблизу точки $\bar{\mathbf{R}}_t$, то будемо вважати, що виконується умова $\Delta\mathbf{p}_{nn'} \cdot (\mathbf{R} - \bar{\mathbf{R}}_t) \ll 1$. Отже, в гамільтоніані (24) можна зробити наближення $1 + \mathrm{i}\Delta\mathbf{p}_{nn'} \cdot (\mathbf{R} - \bar{\mathbf{R}}_t) \approx \mathrm{e}^{\mathrm{i}\Delta\mathbf{p}_{nn'}\cdot(\mathbf{R}-\bar{\mathbf{R}}_t)}$, що разом з виразом (23) приводить до *гамільтоніану зі стрибками імпульсу* (*momentum-jump Hamiltonian*) такого виду:

$$\begin{aligned}\hat{\mathcal{H}}_{\mathrm{mj}} = \hat{\mathcal{T}} &+ \sum_n \left[E_n(\bar{\mathbf{R}}_t) - \mathbf{F}(\bar{\mathbf{R}}_t)\cdot(\mathbf{R} - \bar{\mathbf{R}}_t)\right] |n\rangle\langle n| \\ &+ \mathrm{i}\sum_{n,n'} \bar{\mathbf{v}}\cdot\mathbf{A}_{nn'}(\bar{\mathbf{R}}_t)\mathrm{e}^{\mathrm{i}\Delta\mathbf{p}_{nn'}\cdot(\mathbf{R}-\bar{\mathbf{R}}_t)}|n'\rangle\langle n|.\end{aligned} \tag{25}$$

Саме цей гамільтоніан надалі використовується для опису молекулярної системи.

Використовуючи гамільтоніан (25) у ***підрозділі 5.3*** виводяться рівняння еволюції населеностей електронних адіабатичних рівнів. Еволюція населеності нижнього рівня $\mathcal{P}_1$ описується рівнянням

$$\begin{aligned}\dot{\mathcal{P}}_1 = 2d_{12}(t)\int_0^t \mathrm{d}\tau\, d_{12}(\tau) \\ \times\mathrm{Re}\Big\{ &\langle\Psi_1(\tau)|\mathcal{U}_1^\dagger(t,\tau)\mathrm{e}^{\mathrm{i}\Delta\mathbf{p}_{12}(t)\cdot[\mathbf{R}-\bar{\mathbf{R}}_t]}\mathcal{U}_2(t,\tau)\mathrm{e}^{\mathrm{i}\Delta\mathbf{p}_{21}(\tau)\cdot[\mathbf{R}-\bar{\mathbf{R}}_\tau]}|\Psi_1(\tau)\rangle \\ &-\langle\Psi_2(\tau)|\mathrm{e}^{\mathrm{i}\Delta\mathbf{p}_{21}(\tau)\cdot[\mathbf{R}-\bar{\mathbf{R}}_\tau]}\mathcal{U}_1^\dagger(t,\tau)\mathrm{e}^{\mathrm{i}\Delta\mathbf{p}_{12}(t)\cdot[\mathbf{R}-\bar{\mathbf{R}}_t]}\mathcal{U}_2(t,\tau)|\Psi_2(\tau)\rangle\Big\},\end{aligned} \tag{26}$$

де $d_{12}(t) \equiv \bar{\mathbf{v}}(t)\cdot\mathbf{A}_{12}(\bar{R}_t)$. Оператор еволюції $\mathcal{U}_n(t,\tau)$ визначається як

$$\mathcal{U}_n^\dagger(t,\tau) = \hat{T}\exp\Big[-\mathrm{i}\int_\tau^t dt'\, H_n(t')\Big], \tag{27}$$

де $H_n \equiv \hat{\mathcal{T}} + E_n(\bar{\mathbf{R}}_t) - \mathbf{F}_n(\bar{\mathbf{R}}_t)\cdot(\mathbf{R} - \bar{\mathbf{R}}_t)$, а $\hat{T}$ – операція часового впорядкування. Рівняння для $\mathcal{P}_2$ отримується перестановкою індексів $1 \leftrightarrow 2$ в рівнянні (26).

У ***підрозділі 5.3.1*** використано гауссовий анзатц. Хвильова функція ядерної підсистеми, пов'язана з адіабатичним електронним станом $|n\rangle$, представляється у вигляді $|\Psi_n(t)\rangle = C_n(t)|g_n(\bar{R},\bar{p};t)\rangle$, де $|g_n(\bar{R},\bar{p};t)\rangle$ – нормований гауссовий стан

$$g_n(\bar{R},\bar{p};R,t) = \exp\Big[\mathrm{i}\alpha_{n,t}\left[R - \bar{R}_t\right]^2 + \mathrm{i}\bar{p}_t\left[R - \bar{R}_t\right] + \mathrm{i}\gamma_{n,t}\Big]. \tag{28}$$

Гауссовий хвильовий пакет $g_n(\bar{R},\bar{p};R,t)$ локалізується поблизу координати $\bar{R}_t$ та рухається вздовж n-ї поверхні з середнім імпульсом $\bar{p}_t$. Середній імпульс $\bar{p}_t$ та середня координата $\bar{R}_t$ хвильового пакету описуються ньютонівськими рівняннями руху. Комплексні параметри $\alpha_{n,t}$ та $\gamma_{n,t}$ еволюціонують згідно рівнянь Геллера:

$$\dot{\alpha}_{n,t} = -\frac{2}{M}\alpha_t^2 - \frac{1}{2}\frac{\partial^2 E_n(R)}{\partial R^2}\Big|_{R=\bar{R}_t}, \tag{29а}$$

$$\dot{\gamma}_{n,t} = \frac{\mathrm{i}}{M}\alpha_{n,t} + \frac{\bar{p}_t^2}{2M} - E_n(\bar{R}_t). \tag{29б}$$

Ми нехтуємо другим доданком у правій частині рівняння (29а) через припущення про сильну локалізацію хвильового пакету, яке є центральним у виведенні гамільтоніану (25). Розв'язок рівняння (29а) має такий вигляд:

$$\alpha_{n,t} \equiv \alpha_t = \frac{\alpha_0}{2\alpha_0 M^{-1}t + 1}, \quad \alpha_0 = \frac{\mathrm{i}}{2\sigma^2}, \tag{30}$$

де σ – ширина хвильового пакета. Рівняння (30) описує вільне поширення хвильового пакету. Розв'язок рівняння (29б) записується як:

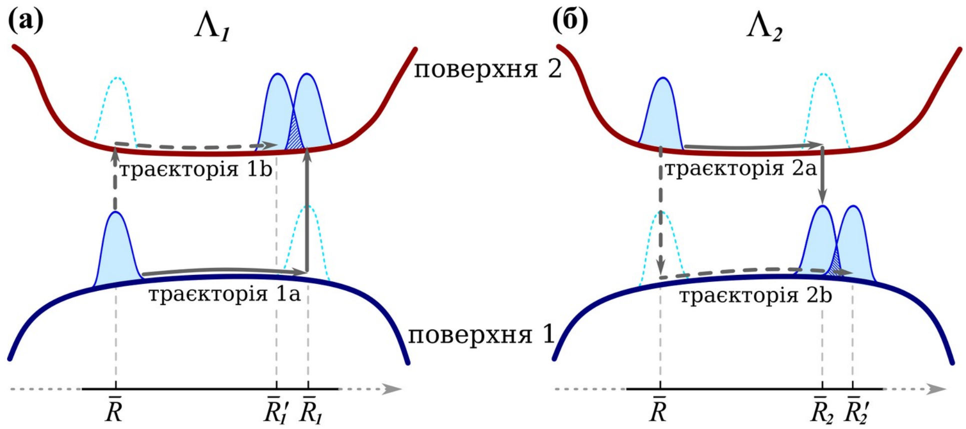

Рис. 8. Графічне представлення траєкторій, які дають внесок у (а) $\Lambda_1(t;\tau)$ та (б) $\Lambda_2(t;\tau)$.

$$\gamma_{n,t} = \gamma_0 + \frac{\mathrm{i}}{2}\ln\left(\frac{2}{M}\alpha_0 t + 1\right) + \mathcal{S}_n(t,0), \tag{31}$$

де $\gamma_0 = \mathrm{i}\ln(2\alpha_0/\pi)/4$, а $\mathcal{S}_n(t,0) = \int_0^t \mathrm{d}u\left[\frac{\bar{p}^2(u)}{2M}|E_n(\bar{R}(u))\right]$ класична дія хвильового пакету протягом часу t.

Використовуючи гауссовий анзатц (28) у рівнянні руху (26) та враховуючи, що $\mathcal{P}_n(t) \equiv |C_n(t)|^2$, отримаємо систему рівнянь, які описують еволюцію населеностей електронних адіабатичних станів:

$$\dot{\mathcal{P}}_1(t) = \int_0^t \mathrm{d}\tau \mathrm{Re}\left[Q_2(t;\tau)\mathcal{P}_2(\tau) - Q_1(t;\tau)\mathcal{P}_1(\tau)\right], \tag{32а}$$

$$\dot{\mathcal{P}}_2(t) = \int_0^t \mathrm{d}\tau \mathrm{Re}\left[Q_1(t;\tau)\mathcal{P}_1(\tau) - Q_2(t;\tau)\mathcal{P}_2(\tau)\right], \tag{32б}$$

де $Q_n(t;\tau) = 2d_{12}(t)d_{12}(\tau)\Lambda_n(t;\tau)$. Функції $\Lambda_{1,2}(t;\tau)$ мають такий вигляд

$$\Lambda_1(t;\tau) = \langle g_2(\bar{R}_1, \bar{p}_1; t;\tau)|g_2(\bar{R}'_1, \bar{p}'_1; t;\tau)\rangle, \tag{33а}$$

$$\Lambda_2(t;\tau) = \langle g_1(\bar{R}_2, \bar{p}_2; t;\tau)|g_1(\bar{R}'_2, \bar{p}'_2; t;\tau)\rangle, \tag{33б}$$

що відповідає перекриттю пари гауссових хвильових пакетів. Для $\Lambda_1(t;\tau)$ ці хвильові пакети є результатом поширення гауссових пакетів по різних траєкторіях (1а та 1б), якщо в момент часу τ вони знаходяться на поверхні 1. Схематичне представлення цих траєкторій показано на Рис. 8(а). Для $\Lambda_2(t;\tau)$ маємо справу з перекриттям хвильових пакетів, утворених в результаті поширення гауссового хвильового пакету (який в момент τ знаходився на поверхні 2) по двох траєкторіях 2а та 2б, як показано на Рис. 8(б). Використовуючи в рівняннях (33) гауссовий анзатц (28) разом з виразами (30) та (31), а також враховуючи принцип Франка-Кондона, згідно якого поблизу перетину рівнів координати та імпульси хвильових пакетів $|g_1\rangle$ та $|g_2\rangle$ мають бути однаковими, приходимо до таких рівнянь руху населеностей

$$\dot{\mathcal{P}}_1(t) = -2d_{12}(t)\int_0^t \mathrm{d}\tau\, d_{12}(\tau)\mathcal{D}(t;\tau)\left\{\cos\left[\varphi_{12}(t;\tau)\right]\mathcal{P}_1(\tau) - \cos\left[\varphi_{21}(t;\tau)\right]\mathcal{P}_2(\tau)\right\}, \tag{34а}$$

$$\dot{\mathcal{P}}_2(t) = -2d_{12}(t)\int_0^t \mathrm{d}\tau\, d_{12}(\tau)\mathcal{D}(t;\tau)\left\{\cos\left[\varphi_{21}(t;\tau)\right]\mathcal{P}_2(\tau) - \cos\left[\varphi_{12}(t;\tau)\right]\mathcal{P}_1(\tau)\right\}, \tag{34б}$$

де функція $\mathcal{D}(t;\tau) = \exp\left\{-\left[R_\mathrm{r}(t) - R_\mathrm{v}(t,\tau)\right]^2/(4\sigma^2)\right\}$ описує пригнічення неадіабатичного зв'язку внаслідок зменшення перекриття хвильових пакетів. Фаза $\varphi_{nn'}(t;\tau)$ в рівняннях (34) визначається як

$$\varphi_{nn'}(t;\tau) = \int_{\tau}^{t} \mathrm{d}u\, \Delta E_{nn'}(R_{\mathrm{c}}(u)) - \frac{\Delta p_{12}(R_{\mathrm{c}}(t))\big[R_{\mathrm{r}}(t) - R_{\mathrm{v}}(t,\tau)\big]}{2}, \tag{35}$$

де $R_{\mathrm{c}}(t) = (R_{\mathrm{r}}(t) + R_{\mathrm{v}}(t,\tau))/2$. Індекси r та v означають «реальну» 1а (2б) та «віртуальну» 1б (2а) траєкторії, відповідно. В рівнянні (35) Δp_{12} обчислюється в середній точці R_{c}, що є в межах точності ефективного гамільтоніану (25).

У ***підрозділі 5.4*** розглядається режим сильної декогеренції, у якому рівняння еволюції населеностей (34) стають звичайними диференціальними (кінетичними) рівняннями, які задовольняють умові детального балансу.

Рівняння, які описують динаміку ядерних степенів вільності, виводяться у ***підрозділі 5.5***. Середнє значення оператора координати ядра змінюється з часом як

$$\partial_t \langle \hat{R}(t) \rangle = -\mathrm{i} \langle \Big[\hat{R}(t), \hat{\mathcal{H}}_{\mathrm{mj}} \Big] \rangle = \frac{\langle \hat{p}(t) \rangle}{M}. \tag{36}$$

Рівняння руху оператора імпульсу ядра записується як

$$\partial_t \hat{p}(t) = \sum_{n=1}^{2} F_n(R(t)) |n\rangle\langle n| + \mathrm{i}\Delta p_{12}(\bar{R}_t) \Big[\hat{V}_{12}(t) - \hat{V}_{21}(t) \Big]. \tag{37}$$

Усереднення цього рівняння по ядерному стану (28) дає таке рівняння

$$\partial_t \langle \hat{p}(t) \rangle = \sum_{n=1}^{2} F_n(R(t)) \mathcal{P}_n(t) + \mathrm{i}\Delta p_{12}(\bar{R}_t) \dot{\mathcal{P}}_1(t). \tag{38}$$

Це рівняння можна інтерпретувати як «усереднене» рівняння руху так званої *surface hopping* динаміки, де ядра, що рухаються вздовж однієї енергетичної поверхні можуть миттєво та випадково перестрибнути на іншу поверхню з ймовірністю, яка визначається рівняннями (34).

У ***підрозділі 5.6*** наведено детальний покроковий опис алгоритму моделювання неадіабатичної динаміки, який є модифікацією алгоритму стрибків поверхні з найменшою кількістю перемикань (*fewest switches surface hopping*, *FSSH*). Основна відмінність нового алгоритму від алгоритму Таллі полягає у використанні рівнянь еволюції населеностей адіабатичних рівнів (34), що враховують декогеренцію.

Запропонований алгоритм тестується на задачах Таллі (*Tully's problem suite*). Цей набір задач включає три задачі з одним ядерним ступенем вільності та двома зв'язаними енергетичними поверхнями, які широко використовуються для перевірки нових методів моделювання неадіабатичної молекулярної динаміки. Опис цих задач представлено у **Додатку Г**. У ***підрозділі 5.7*** порівнюються результати в задачах Таллі, отримані за допомогою нового алгоритму, з результатами стандартного *FSSH* алгоритму та з результатами чисельного розв'язку рівняння Шрьодінгера. Для всіх трьох задач ядерні хвильові пакети в початковий момент часу знаходяться на нижній енергетичній поверхні. Їхній стан задається хвильовою функцією

$$|\mathrm{g}_1(R_0, p_0; R, 0)\rangle = \frac{1}{\sqrt[4]{\pi\sigma_0^2}} \exp\left[\mathrm{i}p_0 R - \frac{(R - R_0)^2}{2\sigma_0^2} \right] |1\rangle, \tag{39}$$

де початкове положення хвильового пакету $R_0 < 0$ знаходиться поза регіоном неадіабатичного зв'язку, параметр $p_0 > 0$ означає початковий імпульс ядра. Початкова ширина хвильового пакету береться $\sigma_0 = 20/p_0$. Для всіх задач маса ядра вважається близькою до маси протона (ядра водню), $M = 2000$ a.u. Для обчислення ймовірностей розсіяння, симулюються $N_{\mathrm{trj}} = 2500$ траєкторій для кожного значення початкового імпульсу p_0 і для запропонованого підходу, і для методу *FSSH*.

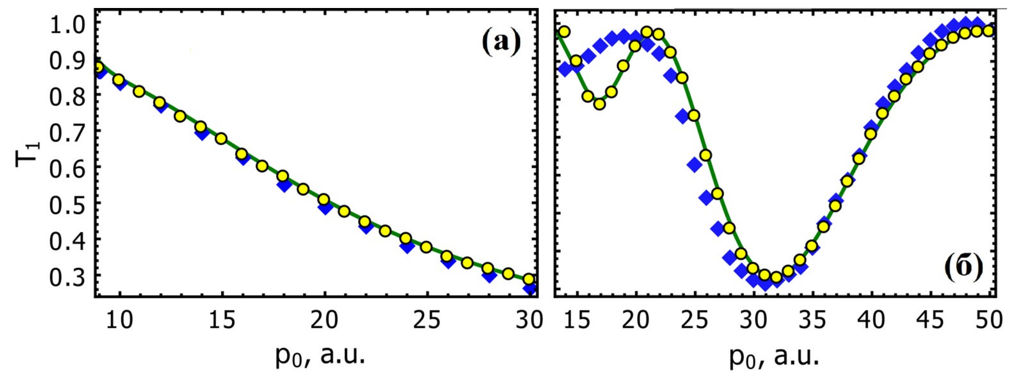

Рис. 9. Залежність ймовірності проходження ядерного хвильового пакету на нижній енергетичній поверхні від початкового імпульсу p_0 для (а) задачі з одним перетином поверхонь (*single avoided crossing*) та (б) задачі з подвійним перетином поверхонь (*double avoided crossing*). *Суцільна крива* отримана розв'язком рівняння Шрьодінгера, *квадрати* — дані, отримані методом *FSSH*, *кола* — дані, отримані запропонованим в роботі підходом.

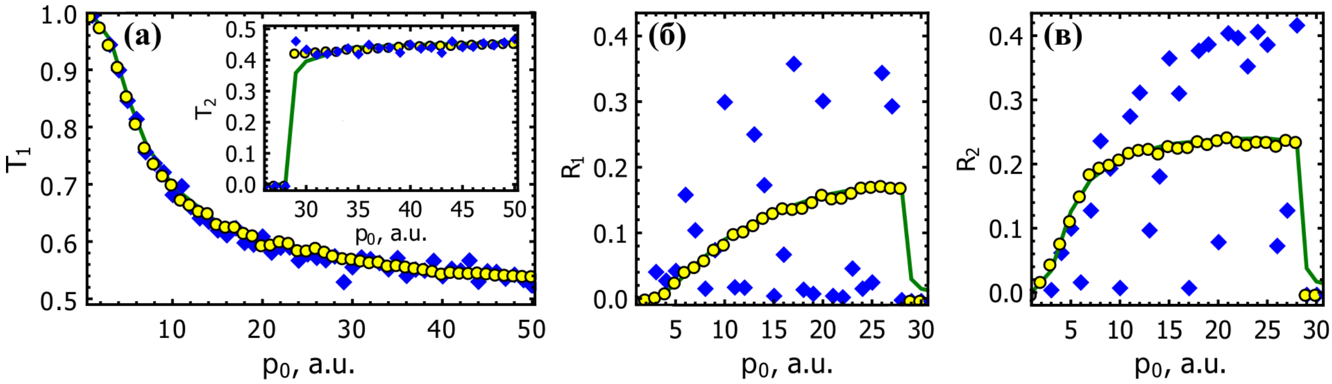

Рис. 10. Залежність ймовірності розсіяння від початкового імпульсу ядра для задачі з протяжною областю з відбиттям (*extended coupling with reflection*): (а) ймовірність проходження по нижній поверхні (на вставці показана ймовірність проходження на верхній поверхні); (б) ймовірність відбиття на нижній поверхні; (в) ймовірність відбиття на верхній поверхні. Позначення такі ж, як і на Рис. 9.

На Рис. 9 показані результати обчислень ймовірності проходження хвильового пакету на нижній енергетичній поверхні T_1 для (а) задачі з одним перетином поверхонь (*single avoided crossing*) та для (б) задачі з подвійним перетином поверхонь (*double avoided crossing*). Для першої задачі обчислення показують, що і стандартний *FSSH,* і новий метод показують добре узгодження з точними результатами, отриманими розв'язком рівняння Шрьодінгера. Особливість другої задачі полягає у виникненні інтерференції між двома шляхами — нижньою та верхньою енергетичними поверхнями. Ця інтерференція призводить до виникнення *осциляцій Штюкельберга* (*Stueckelberg oscillations*) ймовірності розсіяння. Стандартний метод *FSSH* досить добре працює для $p_0 > 30$. Однак при зменшенні p_0 результати *FSSH* стають зсунутими по фазі відносно точних значень. Новий підхід відтворює точні результати кількісно при $p_0 > 20$ та якісно при $p_0 < 20$. Отже, запропонований метод коректно описує інтерференційні ефекти, оскільки оперує двома хвильовими пакетами, а не одним, як у стандартному *FSSH*. Рівняння руху (34) враховують різні положення реального та віртуального хвильових пакетів. Це, зокрема, призводить до виникнення додаткового зсуву фази в рівнянні (35).

Третьою задачею, яка використовується для тестування нового підходу, є задача з протяжною областю неадіабатичного зв'язку (*extended coupling with reflection*). Особливість цієї задачі у тому, що при $p_0 < 28$ стандартний алгоритм *FSSH* не відтворює точні результати ні кількісно, ні якісно. Рисунки 10(б) та 10(в) демонструють цю розбіжність результатів. Таке відхилення виникає через те, що в стандартному підході *FSSH* не враховується декогеренція. В рівняннях еволюції адіабатичних станів (34) не враховується сценарій, при якому один з хвильових пакетів поширюється вздовж верхньої енергетичної поверхні та відбивається від потенціального бар'єру, змінюючи напрям руху. Така ситуація описується додатковою процедурою «породження» (*spawning*) нового віртуального хвильового пакету. Суть цієї процедури у тому, що коли хвильові пакети залишають область неадіабатичного зв'язку, віртуальний хвильовий пакет знищується. Реальний хвильовий пакет або ж залишає обчислювальну область (якщо він перебуває на нижній поверхні), або ж повертається назад до області зв'язку (якщо він знаходиться на верхній поверхні) і тоді симуляція продовжується. Як продемонстровано на Рис. 10, запропонований метод добре відтворює точні результати.

Висновки п'ятого розділу наведено у ***підрозділі 5.8.***

Основні результати дисертації стисло підсумовуються у **висновках**.

ВИСНОВКИ

Досліджена взаємодія фотонних хвильових пакетів з квантовими випромінювачами в одновимірному хвилеводі, а саме: з дворівневим атомом (кубітом) та з резонатором, під'єднаним до кубіта. Запропоновано новий підхід до опису неадіабатичної електронно-ядерної динаміки молекулярних систем. Висновки роботи такі:

1. Показано, що статистика світла, відбитого від дворівневого атома (кубіта) при його збудженні хвильовим пакетом у когерентному стані, залежить від середньої кількості фотонів у вхідному імпульсі та від параметра зв'язку між кубітом та модою хвилеводу. Зроблено висновок, що кубіт можна використовувати як джерело світла із заданою (регульованою) статистикою.
2. Продемонстровано, що після розсіяння однофотонного хвильового пакета на кубіті фотонна функція розподілу у фазовому *(x,p)*-просторі може набувати від'ємних значень у деяких областях фазового простору. Показано, що коли вхідний хвильовий пакет знаходиться у двофотонному стані, статистика фотонів, відбитих кубітом, завжди субпуассонівська, тоді як статистика фотонів, що пройшли, може бути як суб- так і суперпуассонівською в залежності від відстані між однофотонними компонентами вхідного імпульсу та сили взаємодії кубіта з полем хвилеводу.
3. Для опису процесу розсіяння фоківських станів на системі резонатор-кубіт у хіральному (однонаправленому) хвилеводі отримані точні аналітичні вирази амплітуд ймовірностей, що задають еволюцію повного квантового стану системи хвилевід-резонатор-кубіт у випадку одно- та двофотонного вхідного

хвильового пакету. Показано, що в процесі взаємодії з системою резонатор-кубіт спектр двофотонного хвильового пакета модифікується у випадку, коли між кубітом та резонатором є взаємодія. Коли ж резонатор від'єднаний від кубіта, спектр вихідного двофотонного хвильового пакету ідентичний спектру вхідного. Використовуючи розклад Шмідта та ентропію заплутування, продемонстровано, що пара фотонів, яка розсіялась на системі резонатор-кубіт, переходить в частотно-заплутаний (*frequency-entangled*) стан.

4. Продемонстровані фундаментальні обмеження на метод дисперсного зчитування кубіта вимірюючим однофотонним сигналом. Вони пов'язані з тим, що зміна швидкості «витікання» фотона з резонатора та величина дисперсного зсуву частоти резонатора протилежним чином впливають на швидкість вимірювання та парселівський час життя кубіта. Показано, що існує така комбінація значень цих параметрів, при якій контраст зчитування є максимальним для заданої тривалості вимірюючого однофотонного імпульсу. Показано, що при певній різниці частот резонатора та кубіта зсув Блоха-Зіґерта (частоти резонатора) збільшує контраст зчитування.
5. Запропоновано новий формалізм для опису корельованої електронно-ядерної динаміки в молекулярних системах, в якому послідовно враховані ефекти декогеренції. На основі цього підходу запропоновано та реалізовано алгоритм моделювання неадіабатичної молекулярної динаміки. На прикладі тестових задач Таллі продемонстровано високу точність запропонованого алгоритму.

СПИСОК ОПУБЛІКОВАНИХ ПРАЦЬ ЗА ТЕМОЮ ДИСЕРТАЦІЇ

Публікації в наукових журналах:

[1*] O. O. Chumak, E. V. Stolyarov, Phase-space distribution functions for photon propagation in waveguides coupled to a qubit, Phys. Rev. A **88**, 013855 (2013).

[2*] O. O. Chumak, E. V. Stolyarov, Photon distribution function for propagation of two-photon pulses in waveguide-qubit systems, Phys. Rev. A **90**, 063832 (2014).

[3*] E. V. Stolyarov, Few-photon Fock-state wave packet interacting with a cavity-atom system in a waveguide: Exact quantum state dynamics, Phys. Rev. A **99**, 023857 (2019).

[4*] A. M. Sokolov, E. V. Stolyarov, Single-photon limit of dispersive readout of a qubit with a photodetector, Phys. Rev. A **101**, 042306 (2020).

[5*] E. V. Stolyarov, A. J. White, and D. Mozyrsky, Mixed quantum–classical approach to model non-adiabatic electron–nuclear dynamics: Detailed balance and improved surface hopping method, J. Chem. Phys. **153**, 074116 (2020).

Тези доповідей на наукових конференціях:

[6*] E. V. Stolyarov, O. O. Chumak, Operator of photon phase-space density for optical pulse propagation in nonlinear optical fibers, International Conference for Young Scientists Low Temperature Physics ICYS LTP2012 (14-18 May 2012, Kharkiv, Ukraine), Conference programme and Abstracts book, p. 112.

[7*] E. V. Stolyarov, O. O. Chumak, Evolution of single-photon pulses in one-dimensional optical waveguide coupled to a single quantum impurity, 13-th International Young Scientists Conference Optics and High Technology Material Science SPO2012 (25-28 October 2012, Kyiv, Ukraine), Book of abstracts, p. 118.

[8*] E. V. Stolyarov, O. O. Chumak, Evolution of single-photon pulses in one-dimensional photonic-crystal waveguide with quantum impurity, IV Young Scientists Conference Modern Problems of Theoretical Physics (23-26 October 2012, Kyiv, Ukraine), Program & Abstracts Book, p. 91.

[9*] E. V. Stolyarov, O. O. Chumak, The effect of quantum impurity on propagation of single-photon pulses through one-dimensional optical waveguide, XIII Kharkiv Young Scientists Conference on Radiophysics, Electronics, Photonics and Biophysics (4–7 Decemeber 2012, Kharkiv, Ukraine), Conference Proceedings CD-ROM.

[10*] E. V. Stolyarov, O. O. Chumak, Phase-space evolution of coherent-state optical pulses in a one-dimensional waveguide coupled to a qubit, IV International Conference for Young Scientists Low Temperature Physics ICYS LTP2013 (3-7 June 2013, Kharkiv, Ukraine), Abstracts book, p. 69.

СПИСОК ЦИТОВАНОЇ ЛІТЕРАТУРИ

[1] T. E. Northup and R. Blatt, Nat. Photon. **8**, 356 (2014).

[2] D. Roy, C. M. Wilson, and O. Firstenberg, Rev. Mod. Phys. **89**, 021001 (2017).

[3] H. Zheng, D. J. Gauthier, and H. U. Baranger, Phys. Rev. Lett. **111**, 090502 (2013).

[4] A. A. Houck, *et al.*, Nature **449**, 328 (2007).

[5] M. Hofheinz, *et al.*, Nature **454**, 310 (2008).

[6] P. Forn-Diaz, *et al*., Phys. Rev. Appl. **8**, 054015 (2017).

[7] J. Claudon, *et al.*, Nat. Phot. **4**, 174-177 (2010).

[8] H. Snijders, *et al.*, Phys. Rev. Appl. **9**, 031002 (2018).

[9] V. Paulisch, H. J. Kimble, and A. Gonzalez-Tudela, New J. Phys. **18**, 043041 (2016).

[10] H. Pichler, S. Choi, P. Zoller, and M. D. Lukin, Proc. Natl. Acad. Sci. **114**, 11362-11367 (2017).

[11] H. F. Hofmann, K. Kojima, S. Takeuchi, and K. Sasaki, Phys. Rev. A **68**, 043813 (2003).

[12] H. Zheng, D. J. Gauthier, H. U. Baranger, Phys. Rev. A **82**, 063816 (2010);
H. Zheng, D. J. Gauthier, H. U. Baranger, Phys. Rev. A **85**, 043832 (2012).

[13] S. Mahmoodian, G. Calajó, D. E. Chang, K. Hammerer, and A. S. Sørensen, Phys. Rev. X **10**, 031011 (2020).

[14] Ş. E. Kocabaş, E. Rephaeli, and S. Fan, Phys. Rev. A **85**, 023817 (2012).

[15] M. Pletyukhov and V. Gritsev, Phys. Rev. A **94**, 063841 (2015).

[16] A. González-Tudela, V. Paulisch, H. J. Kimble, and J. I. Cirac, Phys. Rev. Lett. **118**, 213601 (2017).

[17] V. Paulisch, A. González-Tudela, H. J. Kimble, and J. I. Cirac, New J. Phys. **19**, 043004 (2017).

[18] V. Paulisch, H. J. Kimble, J. I. Cirac, and A. González-Tudela, Phys. Rev. A **97**, 053831 (2018).

[19] T. R. Nelson, S. Fernandez-Alberti, A. E. Roitberg, and S. Tretiak, Acc. Chem. Res **47**, 1155-1164 (2014).

[20] T. R. Nelson, *et al.*, Chem. Rev. **120**, 2215-2287 (2020).

[21] G. D. Scholes, G. R. Fleming, A. Olaya-Castro, and R. van Grondelle, Nat. Chem **3,** 763-774 (2011).

[22] T. Yonehara, K. Hanasaki, and K. Takatsuka, Chem. Rev. **112**, 499-542 (2012).

[23] R. Crespo-Otero and M. Barbatti, Chem. Rev. **118**, 7026-7068 (2018).

[24] R.Kapral, Annu. Rev. Phys. Chem. **57**, 129-157 (2006).

[25] E. Brunk, and U. Rothlisberger, Chem. Rev. **115**, 6217-6263 (2015).

АНОТАЦІЯ

Столяров Є. В. Транспорт фотонів у одновимірних хвилеводах та неадіабатична молекулярна динаміка. — Рукопис.

Дисертація на здобуття наукового ступеня кандидата фізико-математичних наук за спеціальністю 01.04.05 – оптика, лазерна фізика. — Інститут фізики НАН України, Київ, 2021.

В роботі вивчається динаміка розсіяння фотонних та ядерних хвильових пакетів на квантових випромінювачах у одновимірних хвилеводах та на перетинах ізоенергетичних поверхонь у молекулярних системах.

Досліджено взаємодію хвильового пакету в когерентному стані з дворівневим атомом (кубітом) в одновимірному хвилеводі. Встановлено, що за великої середньої кількості фотонів у вхідному імпульсі відбите випромінювання може бути як суб- так і суперпуассонівським в залежності від сили зв'язку між кубітом та хвилеводом.

Для опису розсіяння хвильових пакетів у одно- та двофотонних станах на кубіті використано метод функції розподілу фотонної густини у координатно-імпульсному просторі. Показано, що середня функція розподілу розсіяного однофотонного хвильового пакету набуває від'ємних значень у певних областях фазового простору навіть за умови позитивної початкової функції розподілу. Отримано аналітичні вирази для просторової та спектральної густини розсіяних фотонів.

Досліджено розсіяння двофотонного хвильового пакета на резонаторі, зв’язаному з кубітом. Отримано та розв'язано рівняння руху для амплітуд ймовірностей, що описують квантовий стан системи. Встановлено, що стан розсіяних фотонів є заплутаним, що якісно відрізняє його від сепарабельного стану вхідних фотонів.

Розглянуто дисперсне зчитування стану кубіта за допомогою фотодетектора в граничному випадку однофотонного вимірюючого імпульсу. Продемонстровані фундаментальні обмеження на такий метод дисперсного зчитування кубіта.

Представлено новий підхід до опису скорельованої електронно-ядерної динаміки в молекулярних системах. Використовуючи гамільтоніан, який описує переходи між адіабатичними електронними рівнями, та формалізм оператора густини, отримано рівняння еволюції населеностей електронних адіабатичних рівнів та рівняння руху ядер. На основі запропонованого теоретичного підходу створено алгоритм для моделювання неадіабатичних процесів у молекулярних системах.

Ключові слова: квантова електродинаміка в хвилеводі, дворівневий атом, кубіт, модель Джейнса-Каммінґса, заплутані стани, неадіабатична молекулярна динаміка, адіабатичні стани, детальний баланс.

АННОТАЦИЯ

Столяров Е. В. Транспорт фотонов в одномерных волноводах и неадиабатическая молекулярная динамика. — Рукопись.

Диссертация на соискание ученой степени кандидата физико-математических наук по специальности 01.04.05 – оптика, лазерная физика. — Институт физики НАН Украины, Киев, 2021.

В работе изучается динамика рассеяния фотонных и ядерных волновых пакетов на квантовых излучателях в одномерных волноводах и на пересечениях изоэнергетических поверхностей в молекулярных системах.

Исследовано взаимодействие волнового пакета в когерентном состоянии с двухуровневым атомом (кубитом) в одномерном волноводе. Установлено, что при большом среднем числе фотонов во входном импульсе отраженное излучение может быть как суб- так и суперпуассоновским в зависимости от силы связи между кубитом и волноводом.

Для описания рассеяния волновых пакетов в одно- и двофотонных состояниях на кубите использован метод функции распределения фотонной плотности в координатно-импульсном пространстве. Показано, что среднее функции распределения рассеянного однофотонного волнового пакета приобретает отрицательные значения в некоторых областях фазового пространства даже при условии положительной начальной функции распределения. Получены аналитические выражения для пространственной и спектральной плотности рассеянных фотонов.

Исследовано рассеяние двофотонного волнового пакета на резонаторе, связанным с кубитом. Получены и решены эволюционные уравнения для амплитуд вероятностей, которые описывают квантовое состояние системы. Установлено, что состояние рассеянных фотонов запутанное, что качественно отличает его от сепарабельного состояния входящих фотонов.

Рассмотрено дисперсное считывание состояния кубита с помощью фотодетектора в предельном случае однофотонного измеряющего импульса. Продемонстрированы фундаментальные ограничения на такой метод дисперсного считывания кубита.

Представлен новый подход к описанию скоррелированной электронно-ядерной динамики в молекулярных системах. Используя гамильтониан, который описывает переходы между адиабатическими электронными уровнями, и формализм оператора плотности, получены уравнения эволюции населенностей этих уровней и уравнения

движения ядер. На основе предложенного теоретического подхода, создан алгоритм для моделирования неадиабатических процессов в молекулярных системах.

Ключевые слова: квантовая электродинамика в волноводе, двухуровневый атом, кубит, модель Джейнса-Камменгса, запутанные состояния, неадиабатическая молекулярная динамика, адиабатические состояния, детальный баланс.

ABSTRACT

Stolyarov E. V. Photon transport in one-dimensional waveguides and non-adiabatic molecular dynamics. — Manuscript.

Thesis for the Doctor of Philosophy degree (Candidate of science in Physics and Mathematics) in specialty 01.04.05 – optics, laser physics. — Institute of Physics of the National Academy of Sciences of Ukraine, Kyiv, 2021.

The thesis concerns the dynamics of scattering of photonic and nuclear wave packets on quantum emitters in one-dimensional waveguides and crossings of potential energy surfaces in molecular systems.

The interaction of the coherent-state wave packet with a two-level atom (qubit) in a one-dimensional waveguide is studied. The evolution equation for the qubit excited state population is derived. It is demonstrated that the qubit excitation depends on the average photon number in the ingoing pulse. Statistics of the radiation scattered off the qubit is studied. It is found that for a large number of photons in the ingoing pulse, the transmitted radiation is described by the superpoissonian statistics, while the reflected radiation can feature either sub- or superpoissonian statistics depending on the coupling strength between the qubit and the waveguide.

The photon density distribution function in phase (coordinate-momentum) space is used for the description of the scattering of single- and two-photon wave packets on a qubit. It is demonstrated that the average phase-space distribution function of the scattered single-photon wave packet acquires negative values in specific regions of phase space even in the case of the positive initial distribution. Analytical expressions for spatial and momentum-space (spectral) distributions of the scattered photons are derived.

In the case of the two-photon ingoing wavepacket constituted by a pair of identical spatially-separated single-photon pulses, the equations of motion governing the evolution of the photon phase-space distribution function are derived and solved numerically. It is demonstrated that for the two-photon ingoing wave packet, the regions of negative values of the photon distribution function emerge only for specific values of the qubit-waveguide coupling and the distance between the single-photon components of the ingoing pulse. It is shown that the average number of scattered photons and its variance depends not only on the qubit-waveguide coupling strength and the distance between the single-photon ingoing pulses but also on the bandwidth of the latter.

The time-dependent wavefunction of the system is employed for the description of the two-photon wave packet evolution in a one-dimensional waveguide coupled to a resonator-qubit system. The set of equations of motion governing the probability amplitudes, which describe the quantum state of the system, is derived and solved both analytically and numerically. This allows investigating a modification of the spectrum of the wave packet in the course of its interaction with the resonator-qubit system as well as the excitation dynamics of the latter. It is demonstrated that the probability of finding two excita-

tions in the resonator-qubit system is significantly reduced compared to the case of the resonator uncoupled from the qubit, which indicates the photon blockade in this subsystem. It is shown that the spectrum of the scattered wave packet differs from the spectrum of the ingoing wave packet. Using the Schmidt decomposition, it is demonstrated that the scattered photons are entangled in contrast to the separable state of the ingoing photons.

Dispersive readout of the qubit using the photodetector in the ultimate limit of the single-photon probe pulse is considered. Coupling between the qubit and the resonator is described by the Rabi Hamiltonian. Fast-oscillating terms in the qubit-resonator coupling Hamiltonian are treated as a perturbation and are eliminated using the unitary transformation resulting in the Bloch-Siegert shift in the resonator frequency. The advantages and limitations of the considered readout scheme is discussed in detail. The parameters of the system providing the maximal readout contrast are determined.

Modeling the non-adiabatic processes in molecular systems is a requisite tool for the theoretical study of various photoinduced processes such as exciton localization, charge transfer in photosynthetic complexes and photovoltaic systems. The effective Hamiltonian, describing transitions between electronic adiabatic levels and quantum fluctuations along the classical nuclear trajectories, is introduced. The evolution equations governing the electronic occupation numbers and the nuclear degrees of freedom are derived using this Hamiltonian and the density operator formalism. It is shown that these equations become Markovian in the case of strong decoherence. Equations of motion for the electronic occupations are studied in the non-Markovian regime as well. The algorithm for modeling the non-adiabatic molecular dynamics is implemented using the proposed theoretical approach.

Keywords: waveguide quantum electrodynamics, two-level atom, qubit, Jaynes-Cummings model, entangled states, non-adiabatic molecular dynamics, adiabatic states, detailed balance.