

# МАТЕМАТИЧЕСКОЕ МОДЕЛИРОВАНИЕ КВАНТОВЫХ БИЕНИЙ ЗАСЕЛЕННОСТИ СОСТОЯНИЙ ТРЕХУРОВНЕВЫХ НАНОЧАСТИЦ ПРИ СПОНТАННОЙ ФЛУОРЕСЦЕНЦИИ И ПРИ РАССЕЯНИИ МОНОХРОМАТИЧЕСКОГО СВЕТА

В.А. Морозов

*Институт органической химии им. Н.Д. Зелинского  
Российской академии наук, Москва*

*morozov@mail.ioc.ac.ru*

Поступила 08.10.2017

На основе использования решений уравнения Шредингера для составной системы из трехуровневой модели наночастицы и взаимодействующего с ней квантованного поля излучения получены выражения, в аналитическом виде описывающие биения заселенности состояний частицы при спонтанном излучении. Рассмотрены случаи начального возбуждения наночастицы в радиационное состояние и начального возбуждения в нерадиационное состояние, связанное динамическим взаимодействием с радиационным состоянием. Проведено также моделирование динамики заселенности состояний такой частицы при рассеянии длительного импульса монохроматического резонансного облучения. Установлено, что полученные выражения для динамики заселенности всех состояний частицы при спонтанном излучении являются точными решениями соответствующей системы оптических уравнений Блоха. Результаты моделирования динамики заселенности состояний частицы при рассеянии согласуются с результатами соответствующего моделирования на основе уравнений Блоха для заселенности радиационного состояния, но существенно различаются для заселенности нерадиационного и основного состояний частицы на начальном этапе рассеяния импульса облучения. Дано объяснение происхождения такого сходства и различия.

УДК 535.14

## **Введение**

Под термином “квантовые биения состояний” подразумевают эффект периодического изменения заселенности состояний квантовой системы и обычно связывают их с проявлением периодического изменения интенсивности спонтанного излучения (флуоресценции) этой системы. Такие биения рассматривают как проявление интерференции одновременно возбужденных собственных состояний атома с различными значениями

их энергии (литературу см., например, в [1]), молекулы (литературу см., например, в [2]), а также проявлением “когерентного”, динамического взаимодействия между состояниями молекулы, одно из которых заселено в начальный момент времени [3].

В последние годы уделяется много внимания теоретическому изучению биений заселенности состояний изолированных наноструктур с использованием различных моделей наночастиц (см., например, в [4-9]). Анализ экспериментальных данных таких биений интенсивности флуоресценции квантовых точек, как, например, биения, связанные со свободной прецессией электронных и дырочных спинов, возбужденных состояний “горячего” триона и др., позволяет установить параметры обменного взаимодействия состояний этих наночастиц, зеемановского расщепления их спектральных линий и определить тонкую структуру состояний частицы, скрытую в неоднородно уширенном контуре полосы поглощения оптического перехода. Такая информация необходима для выбора или конструирования таких наночастиц, параметры которых подходят для использования их в качестве различных перспективных оптоэлектронных устройств (см. в монографии [10]).

Моделирование биений заселенности состояний наночастиц в отмеченных выше работах (кроме [7]) основано на применении представлений формализма оптических уравнений Блоха (ОУБ). Формализм ОУБ использует классическое описание поля облучения частицы при феноменологическом описании распада ее возбужденных состояний и является менее последовательным в отношении представлений о взаимодействии частицы с полем излучения и менее строгим в отношении применения математического аппарата по сравнению с формализмом, рассматривающим частицу как открытую динамическую квантовую систему, которая входит в состав общей (“составной”) системы из частицы и взаимодействующего с ней квантованного поля излучения (см., например, в [1, 11]). В последнее время этот формализм предусматривает использование представления о том, что естественное макроскопическое диссипативное окружение частицы выступает в роли детектора, который в режиме счета фотонов непрерывно определяет состояние поля излучения с отнесением считывания результата этого определения (“регистрации”) к определению состояния частицы, являющегося конечным для ее перехода с излучением соответствующего “зарегистрированного” фотона, или начальным – при регистрации неизменившегося состояния поля (см. в [12-14]).

В работах [15-17] установлено, что при использовании такого формализма квантовой теории составной системы (который будем обозначать как формализм “КТСС”) результаты моделирования динамики спектроскопических переходов (по терминологии [18]) трехуровневой частицы с диссипативной связью ее возбужденных состояний существенно отличаются от результатов соответствующего моделирования при использовании формализма ОУБ.

В настоящей работе проведено моделирование динамики квантовых биений заселенности состояний трехуровневой частицы при рассеянии длительного импульса монохроматического света и при спонтанном излучении для случая начального возбуждения наночастицы в ее радиационное состояние и для случая начального возбуждения в ее нерадиационное состояние, связанное динамическим взаимодействием с радиационным состоянием. Полученные результаты этого моделирования при использовании формализма КТСС сопоставлены с результатами, полученными на основе использования формализма ОУБ. Приведены причины сходства и различия этих результатов.

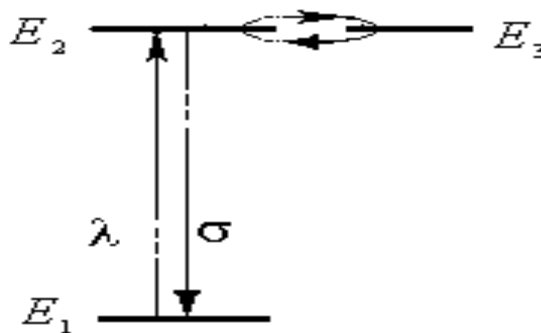
### **Модель составной системы**

Основное состояние принятой трехуровневой модели частицы обозначено цифрой 1. Принято, что одно из возбужденных состояний является радиационным. Оно обозначено цифрой 2. Другое возбужденное состояние полагается нерадиационным (“темным”). Оно обозначено цифрой 3. Относительное положение уровней энергии учитыв-

ваемых состояний такой частицы схематически приведено на рис. 1. Отрезками горизонтальных утолщенных линий отмечены уровни энергии  $E_n$  ( $n = 1 \div 3$ ) такие, что  $E_1 \ll E_2 = E_3$ . Тонкими вертикальными линиями со стрелками обозначены учитываемые радиационные, а круговой линией – нерадиационные переходы между состояниями частицы, соответствующими приведенным значениям энергии. Рядом с каждой вертикальной линией со стрелкой приведена буква, обозначающая “сорт” соответствующего фотона, затрагиваемого переходом молекулы между состояниями, соединенными этой стрелкой. Например, буква  $\lambda$  означает сорт фотона облучения, буква  $\sigma$  – сорт фотона спонтанного излучения (флуоресценции) при переходе частицы из состояния 2 в состояние 1. Для сорта фотонов рассеянного света сохраним обозначение  $\sigma$ , отмечая при этом, что  $\sigma \neq \lambda$ .

Если под частицей подразумевать одноэлектронную двойную полупроводниковую квантовую точку – то состояния 1 и 2 можно отнести к одной квантовой точке, а состояние 3 к другой квантовой точке, отделенной от первой квантовой точки потенциальным барьером, сквозь который происходит туннелирование электрона, как в модели, рассмотренной в [4,8]. Состояния принятой модели частицы могут также рассматриваться как нижайшие по энергии состояния электрон-дырочных пар одиночной полупроводниковой квантовой точки, возбужденные электрон-фононные состояния которой связаны взаимодействиями, приводящими к процессам нерадиационного переноса энергии между ними, как в модели, принятой в [9] (и многих других работах, список которых приведен в этой работе).

Если под такой частицей подразумевать отдельную молекулу, то состояния 1 и 2 можно отнести к одной ее изомерной форме (первый изомер), а состояние 3 – к другой изомерной форме (второй изомер) [19,20]. Оператор энергии взаимодействия между частицей (молекулой) и полем излучения в дипольном приближении запишем в виде  $V = -(\hat{e}\hat{d})$ , где  $\hat{d}$  – оператор дипольного момента частицы (электронной подсистемы молекулы),  $\hat{e}$  – напряженность электрического поля световой волны (для простоты будем полагать, что вектор  $\hat{e}$  параллелен вектору  $\hat{d}$ ). При рассмотрении рассеяния света будем полагать, что монохроматический свет, напряжённость электрического поля которого  $\hat{e}(t) = 2\hat{e}_0 \sin \omega_l t$ , ( $t \geq 0$ ), падает на частицу, положение которой соотносено с центром декартовой системы координат  $X, Y, Z$ , распространяется вдоль оси  $Z$  и поляризован вдоль оси  $X$ . Оператор энергии динамического взаимодействия между состояниями 2 и 3 частицы обозначаем буквой  $W$ . Предполагается, что отличны от нуля только матричные элементы  $W$  по состояниям 2 и 3. Для этих матричных элементов используется обозначение  $W_{23} = W_{32} \equiv \hbar w$ . Относительно конкретного вида этого оператора для молекул см., например, монографию [20].



**Рис. 1.** Схема относительного положения уровней энергии модели частицы с указанием учитываемых переходов между ними

Для краткости, динамику заселенности состояний частицы при рассеянии длительного импульса монохроматического облучения будем называть динамикой рассеяния и динамикой заселенности состояний частицы при спонтанном излучении из радиационного состояния – динамикой флуоресценции.

При рассмотрении динамики рассеяния учитываемые состояния составной системы обозначены как  $\lambda 1, 02, 03, \sigma 1$ . Состояние  $\lambda 1$  означает, что частица находится в состоянии 1, а поле излучения содержит  $N$  фотонов сорта  $\lambda$ , состояние  $02$  ( $03$ ) означает, что частица находится в состоянии 2(3), а поле излучения содержит  $N-1$  фотонов  $\lambda$ ; состояние  $\sigma 1$  – частица в состоянии 1, поле содержит  $N-1$  фотонов  $\lambda$  и один фотон  $\sigma \neq \lambda$ . Используются обозначения:  $\omega_\lambda$  – частота фотона  $\lambda$  и  $\omega_\sigma$  – частота фотона  $\sigma$ .

При рассмотрении динамики флуоресценции состояние  $02$  ( $03$ ) означает, что частица находится в состоянии 2(3), а поле излучения не содержит фотонов; состояние  $\sigma 1$  означает, что частица находится в состоянии 1, а поле содержит фотон  $\sigma$ .

Для объема  $L^3$  пространства, в котором находится частица и рассматриваемое поле излучения, и реального значения матричного элемента оператора дипольного момента частицы  $\hat{d}$  при введенных обозначениях имеем, например, для матричного элемента оператора  $V$  по состояниям системы  $\sigma 1$  и  $02$  при рассмотрении динамики флуоресценции такое выражение:  $V_{\sigma 1}^{02} = iL^{-3/2} \sqrt{2\pi \cdot \hbar \omega_\sigma} \cdot (\hat{d}_\sigma)_{12}$ ,  $(\hat{d}_\sigma)_{12}$  – матричный элемент по состояниям частицы 1 и 2 проекции оператора  $\hat{d}$  на направление поляризации фотона  $\sigma$ , а при рассмотрении динамики рассеяния –  $V_{\lambda 1}^{02} = iL^{-3/2} \sqrt{2\pi N \hbar \omega_\lambda} \cdot (\hat{d}_x)_{12} \equiv i\hbar \Omega_R$ ;  $(\hat{d}_x)_{12}$  – матричный элемент по состояниям частицы 1 и 2 проекции оператора  $\hat{d}$  на направление поляризации (ось  $X$ ) фотона  $\lambda$ ,  $N$  – число фотонов облучения, приходящихся на объем  $L^3$ .

## Динамика заселенности состояний частицы по формализму теории составной системы

Моделирование динамики заселенности состояния  $j$  составной системы основано на использовании решения уравнения Шредингера в представлении взаимодействия:

$$i\hbar \dot{b}_j(t) = \sum_k (V + W)_{jk} b_k(t) \cdot \exp[i(E_j - E_k)t / \hbar] + i\hbar \delta_{ji} \delta(t).$$

Здесь  $b_j(t)$  – амплитуда вероятности заселенности состояния  $j$  как функция времени  $t$ ,  $\delta_{ji}$  – символ Кронекера,  $\delta(t)$  – функция Дирака;  $i$  – начальное состояние системы.

При использовании фурье-представления

$$b_j(t) = i(2\pi)^{-1} \int G_j(E) \cdot \exp[i(E_j - E)t / \hbar] dE,$$

где  $E$  – формальная энергетическая переменная, решение уравнения Шредингера сводится к решению системы уравнений

$$(E - E_j) \cdot G_j(E) = \sum_k (V + W)_{jk} G_k(E) + \delta_{ji}.$$

При моделировании динамики флуоресценции частицы из первоначально возбужденного состояния 2 время  $t$  будет отсчитываться от того момента, когда возбуждавший частицу короткий световой импульс света с несущей частотой, равной частоте перехода частицы из основного состояния в это состояние, перестал взаимодействовать с ней. Относительно условий возбуждения квантовой частицы в одно из ее состояний коротким импульсом света см., например, в [21,22]. Также будет проведено моделирование динамики спонтанной флуоресценции частицы, первоначально возбужденной в темное состояние, например, в результате соударения с другой частицей.

При рассмотрении динамики флуоресценции при первоначальном возбуждении частицы с состояние 2 полагаем  $b_{02}(0) = 1$  и получаем решение системы уравнений для  $G_j(E)$  в виде:

$$G_{02}(E) = \frac{E - E_{02}}{(E - E_{02} + i\hbar\gamma)(E - E_{02}) - (\hbar w)^2},$$

$$G_{03}(E) = \hbar w \zeta(E - E_{03}) G_{02},$$

$$G_{\sigma 1}(E) = V_{\sigma 1}^{02} \zeta(E - E_{\sigma 1}) G_{02}.$$

Здесь использовано обычно вводимое (см., например, в [23]) обозначение:

$$\gamma = i\hbar^{-1} \sum_{\sigma} |V_{\sigma 1}^{02}|^2 \zeta(E - E_{\sigma 1}),$$

где  $\zeta(E) = P/E - i\pi\delta(E)$ ,  $P/E$  – главное значение функции  $1/E$ . В дальнейшем под выражением  $\gamma$  подразумевается реальная часть приведенного выше определения этой величины, взятая при значении энергии составной системы в состоянии 02, а мнимая часть, отражающая радиационный сдвиг уровня энергии состояния 2 частицы, не учитывается (см. в [23]), так что константа

$$\gamma = \pi\hbar^{-2} \sum_{\sigma} |V_{\sigma 1}^{02}|^2 \delta(E_{02} - E_{\sigma 1}) = 2\omega_{21}^3 d_{21}^2 / 3\hbar c^3$$

характеризует скорость радиационного распада состояния 2 частицы. Предполагается, что  $\gamma \ll \omega_{21} = \hbar^{-1}(E_2 - E_1)$ .

Используя фурье-представление для амплитуд  $b_j(t)$  и приведенные выше решения системы уравнений для  $G_j(E)$ , получаем:

$$b_{02}(t) = \exp(-\gamma t / 2) [\cos(at) - (\gamma / 2a) \sin(at)],$$

$$b_{03}(t) = -i w \exp(-\gamma t / 2) \sin(at) / a,$$

$$b_{\sigma 1}(t) = V_{\sigma 1}^{02} \left\{ \frac{\Delta \exp(i\Delta t)}{w^2 - \Delta^2 + i\gamma\Delta} + \frac{\exp(-\gamma t / 2)}{2a} \left[ \frac{(a - i\gamma / 2) \exp(-iat)}{\Delta + a - i\gamma / 2} + \frac{(a + i\gamma / 2) \exp(iat)}{\Delta - a - i\gamma / 2} \right] \right\},$$

где  $a = \sqrt{w^2 - \gamma^2 / 4}$  для  $w > \gamma / 2$ ;  $\Delta = \omega_{21} - \omega_{\sigma}$ .

При вычислении этих значений амплитуд вероятности заселенности состояний системы использовалось то обстоятельство, что матричные элементы операторов  $V$  и  $W$  можно считать медленно меняющимися функциями  $E$  в области тех значений, которые захватывают максимум резонансного знаменателя выражений  $G_j(E)$ , и выносить их из под знака интеграла при том значении переменной интегрирования, которое соответствует этому максимуму.

В отношении определения динамики заселенности состояний частицы в процессе излучения фотонов флуоресценции приведем общие представления теории преобразования света частицей и квантовой теории измерений относительно динамики характеристик состояний открытых систем [14] в формализме КТСС. Согласно этим представлениям непрерывное взаимодействие излучающей свет молекулы с естественным макроскопическим окружением приводит к потере когерентности состояний составной системы (“декогеренции”) и при этом осуществляется реальная – как это отмечено и в [24] – регистрация (“измерение”) состояния частицы как детектирование состояний поля излучения в режиме счета фотонов, которое приводит к “уничтожению” фотона, излученного частицей при переходе в это состояние, сопровождающимся редукцией волновой функции системы. С учетом этого, заселенность конечного для рассматриваемого перехода состояния частицы определяется (как и в [25]) суммой вероятностей заселенности состояний составной

системы, каждое слагаемое в которой соответствует появлению фотона, который может быть излучен частицей в результате ее перехода в это состояние и поглощен макроскопическим окружением (детектором). По [26] – это суммирование вероятностей “совместимых альтернатив” (“интерферирующих альтернатив”). Заселенность начального состояния частицы для рассматриваемого спонтанного перехода определяется “условной вероятностью нулевого измерения” – вероятностью регистрации отсутствия каких-либо излученных частицей фотонов при вмешательстве детектора в этот процесс излучения [12,13]. При этом, как отмечено в [12], под непрерывными измерениями следует подразумевать быструю последовательность измерений, такую, что интервал  $\Delta t$  между последовательными измерениями должен – в нашем случае – удовлетворять условиям  $\omega_{21}\Delta t \gg 2\pi$  и  $\gamma \Delta t \gg 1$ , которые легко выполняются при оптических переходах.

Следуя этим представлениям, получаем выражения  $P_2(t)$  и  $P_3(t)$  для заселенности состояний 2 и 3 частицы:

$$P_{02}(t) = |b_{02}(t)|^2 = \exp(-\gamma t) [\cos(at) - (\gamma/2a)\sin(at)]^2 \equiv P_2(t),$$

$$P_{03}(t) = |b_{03}(t)|^2 = w^2 \exp(-\gamma t) \sin^2(at) / a^2 \equiv P_3(t),$$

и для зависимости от времени  $P_1(t)$  заселенности состояния 1 частицы при детектировании фотонов  $\sigma$  получаем:

$$P_{(\sigma)1}(t) = \sum_{\sigma} |b_{\sigma 1}(t)|^2 = 1 - \exp(-\gamma t) [4w^2 - \gamma^2 \cos(2at) - 2\gamma a \sin(2at)] / 4a^2 \equiv P_1(t).$$

Величина  $\hbar\omega_{21}\dot{P}_{(\sigma)1}(t)$  представляет собой скорость изменения полной энергии, излучаемой частицей при рассматриваемом спонтанном переходе  $2 \rightarrow 1$ , т.е. определяет динамику интенсивности спонтанной флуоресценции  $I_{\Phi}(t)$ . Используя полученные выражения  $P_{(\sigma)1}(t)$  и  $P_2(t)$ , находим, что имеет место равенство:

$$\hbar\omega_{21}\dot{P}_1(t) \equiv I_{\Phi}(t) = 2\gamma \hbar\omega_{21}P_2(t).$$

На основании этого равенства заключаем, что динамика интенсивности спонтанной флуоресценции определяется динамикой заселенности возбужденного в начальный момент времени радиационного состояния.

Проводя аналогичные вычисления при моделировании динамики флуоресценции для случая первоначального возбуждения частицы в темное состояние, получаем для амплитуд заселенности состояний системы – отмечая их волнистой чертой над буквой  $b$  для отличия от соответствующих амплитуд для случая спонтанного излучения из первоначально возбужденного радиационного состояния частицы – следующие выражения:

$$\tilde{b}_{02}(t) = -iw \exp(-\gamma t / 2) \sin(at) / a,$$

$$\tilde{b}_{03}(t) = \exp(-\gamma t / 2) [\cos(at) + (\gamma / 2a) \sin(at)],$$

$$\tilde{b}_{(\sigma)1}(t) = wV_{\sigma 1}^{02} \left\{ \frac{1}{\Delta^2 - w^2 - i\gamma\Delta} + \frac{\exp(-\gamma t / 2 - i\Delta t)}{2a} \left[ \frac{\exp(-iat)}{\Delta + a - i\gamma/2} - \frac{\exp(iat)}{\Delta - a - i\gamma/2} \right] \right\}.$$

Соответственно имеем выражения для заселенности состояний частицы:

$$\tilde{P}_{02}(t) = |\tilde{b}_{02}(t)|^2 = w^2 \exp(-\gamma t) \sin^2(at) / a^2 \equiv \tilde{P}_2(t) = P_3(t),$$

$$\tilde{P}_{03}(t) = |\tilde{b}_{03}(t)|^2 = \exp(-\gamma t) [\cos(at) + (\gamma / 2a) \sin(at)]^2 \equiv \tilde{P}_3(t),$$

$$\tilde{P}_{(\sigma)1}(t) = \sum_{\sigma} |\tilde{b}_{\sigma 1}(t)|^2 = 1 - \exp(-\gamma t) [4w^2 - \gamma^2 \cos(2at) + 2\gamma a \sin(2at)] / 4a^2 \equiv \tilde{P}_1(t).$$

Используя эти выражения, получаем:

$$\hbar\omega_{21}\tilde{P}_1(t) \equiv \tilde{I}_\Phi(t) = 2\gamma\hbar\omega_{21}\tilde{P}_2(t),$$

т.е. так же, как при первоначальном возбуждении частицы в радиационное состояние, при первоначальном возбуждении частицы в темное состояние динамика интенсивности спонтанной флуоресценции определяется динамикой заселенности радиационного состояния. Различие вида функций  $\tilde{I}_\Phi(t)$  и  $I_\Phi(t)$  можно видеть при сравнении рисунка 2 с рисунком 3.

На рис. 2 и на рис. 3 изображены функции  $P_n(t)$  и  $\tilde{P}_n(t)$ ,  $n=1 \div 3$  для частицы, у которой  $w = 5\gamma$ . По оси абсцисс на этих рисунках отложены значения  $P_n$ ,  $\tilde{P}_n$ , а по оси ординат – время в единицах  $\tau = \gamma^{-1}$ . Кривые  $P_n(t)$  и  $\tilde{P}_n(t)$  помечены буквами с соответствующими индексами. Утолщенные кривые изображают функции  $P_2(t)$  и  $\tilde{P}_2(t)$ , тонкие штриховые – функции  $P_3(t)$  и  $\tilde{P}_3(t)$ , утолщенные точечные – функции  $P_1(t)$  и  $\tilde{P}_2(t)$ .

Как видно из сравнения этих рисунков, биения заселенности состояний 2 и 3 происходят в противофазе, с отставанием биений  $P_3(t)$  заселенности темного состояния частицы от биений  $P_2(t)$  первоначально заселенного радиационного состояния и с опережением биений  $\tilde{P}_3(t)$  заселенности первоначально возбужденного темного состояния частицы по отношению к биениям  $\tilde{P}_2(t)$  заселенности радиационного состояния частицы. Биения  $P_2(t)$  происходят в противофазе с опережением биений  $\tilde{P}_2(t)$ , а биения  $P_3(t)$  – с отставанием по отношению к биениям  $\tilde{P}_3(t)$ .

В случае облучения частицы длительным импульсом монохроматического света ограничимся рассмотрением частного случая резонансного облучения  $\omega_L = \omega_{21} = \omega_\lambda$

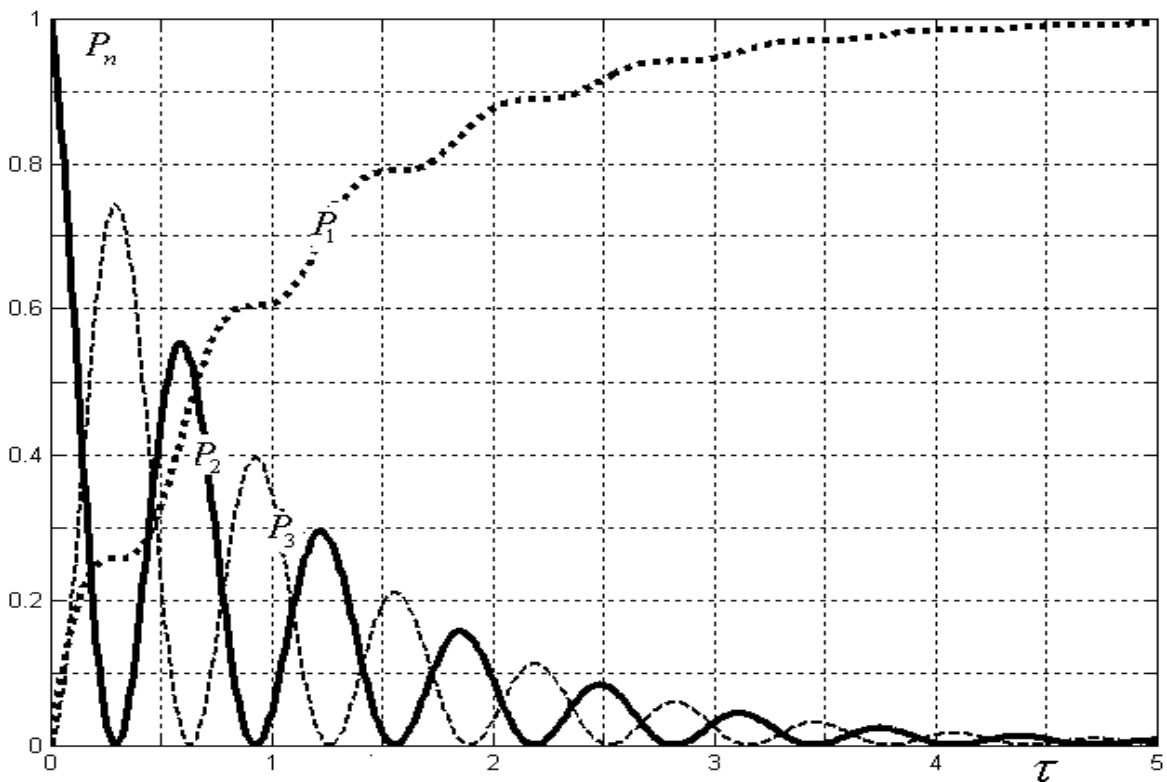
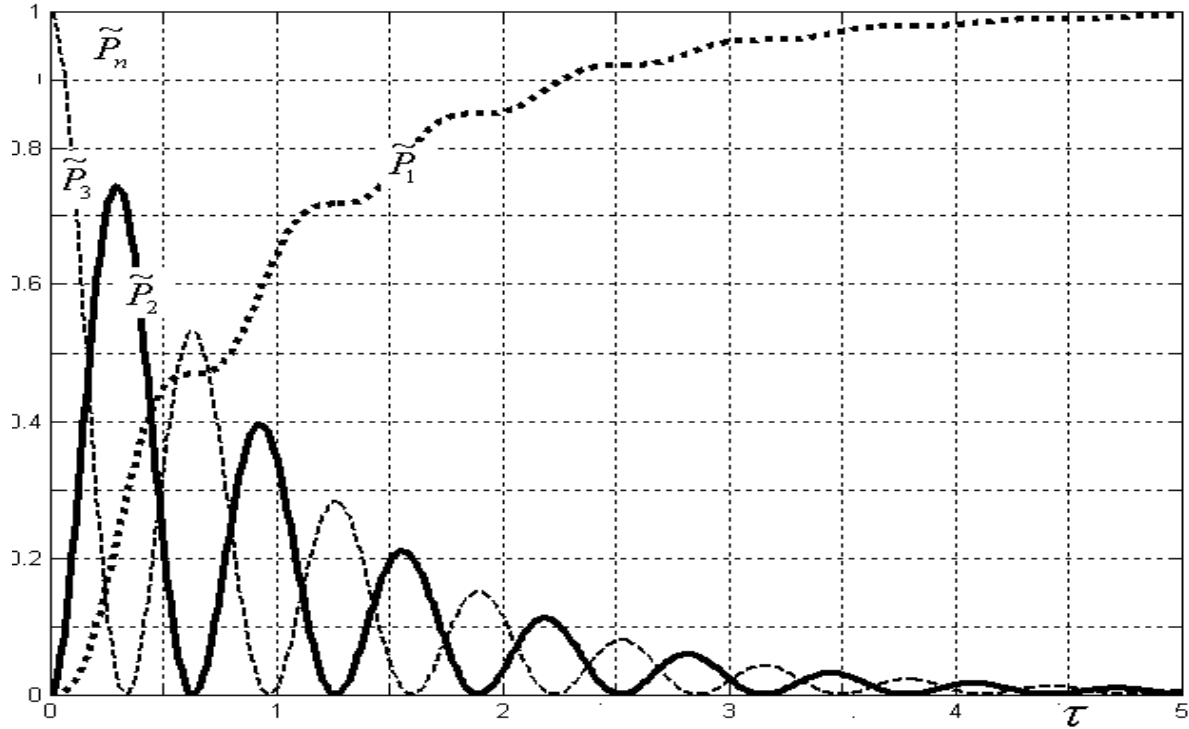


Рис. 2. Пример вида биений заселенности состояний при спонтанном излучении частицы, первоначально возбужденной в радиационное состояние



**Рис. 3.** Пример вида биений заселенности состояний при спонтанном излучении частицы, первоначально возбужденной в нерadiационное состояние

такой интенсивности, что  $\Omega_R < 0.5\gamma$ , и достаточно сильного динамического взаимодействия между состояниями 2 и 3, а именно такого, что  $w > 0.5\gamma$ .

Решая систему уравнений (1) для принятой модели трехуровневой частицы при  $b_{\lambda 1}(0) = 1$  и помечая функции  $G_j(E)$  – и соответственно функции  $b_j(t)$  – чертой над буквой  $G$  и над буквой  $b$ , для того, чтобы отметить, что они относятся к случаю рассеяния частицей монохроматического облучения длительным импульсом света, а не к случаю спонтанного излучения из первоначально возбужденной в состояние 2 частицы, получаем:

$$\begin{aligned}\bar{G}_{02}(E) &= \frac{V_{02}^{\lambda 1}}{(E - E_3)(E - E_2 + i\hbar\gamma) - \hbar^2 \bar{w}^2}, \\ \bar{G}_{03}(E) &= \hbar w \bar{G}_{02}(E) \zeta(E - E_3), \\ \bar{G}_{\sigma 1}(E) &= V_{\sigma 1}^{02} \bar{G}_{02}(E) \zeta(E - E_{\sigma 1}), \\ \bar{G}_{\lambda 1}(E) &= \frac{(E - E_2)(E - E_2 + i\hbar\gamma) - \hbar w^2}{(E - E_2)(E - E_2 + i\hbar\gamma) - \hbar^2 \bar{w}^2} \zeta(E - E_{\lambda 1}),\end{aligned}$$

где  $\Omega_R^2 + w^2 \equiv \bar{w}^2$  и константа  $\gamma$  определяется следующим образом:

$$\gamma = \pi \hbar^{-2} \sum_{\sigma \neq \lambda} |V_{\sigma 1}^{02}|^2 \delta(E_{02} - E_{\sigma 1}),$$

т.е. как результат суммирования по сортам рассеянных фотонов, в отличие от той константы  $\gamma$ , которая фигурирует в приведенных выше выражениях, относящихся к флуоресценции, и содержит суммирование по всем сортам фотонов флуоресценции. Численное значение этих констант практически одинаково, поэтому используемое при моделировании динамики флуоресценции обозначение  $\gamma$  будет сохранено. Однако при нахождении решения системы уравнений для  $\bar{G}_j(E)$  использование условия  $\sigma \neq \lambda$



является принципиальным. Что касается физического смысла этого условия, то отметим, что оно отражает представление формализма КТСС о процессе рассеяния света, как о процессе, при котором не происходит “перепоглощение” фотона облучения  $\lambda$ , в отличие от представления, согласно которому при рассмотрении динамики заселенности состояний рассеивающей свет частицы учитывается перепоглощение (“reabsorption”) фотонов рассеянного света при “адекватном описании процесса радиационного затухания, включающего много фотонов” (...”in adequately describing the radiative damping process when many photons are involved, “ – см. страницы 1919, 1920, 1925 в [27]). Согласно [27], такое представление о преобразовании двухуровневой частицей длительного импульса облучения согласуется с представлениями о динамике рассеяния света частицей, описываемой формализмом ОУБ.

Используя фурье-представление амплитуд  $b_j(t)$  и приведенные решения  $\bar{G}_j(E)$ , находим:

$$\begin{aligned}\bar{b}_{\lambda 1}(t) &= \{w^2 + \Omega_R^2 \exp(-\gamma t / 2)[\cos(\bar{a}t) + \gamma \sin(\bar{a}t) / 2\bar{a}]\} / \bar{w}^2, \\ \bar{b}_{02}(t) &= -iV_{02}^{\lambda 1} \exp(-\gamma t / 2) \sin(\bar{a}t) / (\hbar \bar{a}), \\ \bar{b}_{03}(t) &= w\Omega_R \{\exp(-\gamma t / 2)[\cos(\bar{a}t) + \gamma \sin(\bar{a}t) / 2\bar{a}] - 1\} / \bar{w}^2.\end{aligned}$$

Используя выражение для  $\bar{b}_{\lambda 1}(t)$ , для динамики заселенности начального состояния системы при детектировании неизменного состояния поля облучения (“нулевом измерении” [12,13]) имеем следующее выражение:

$$\bar{P}_{\lambda 1}(t) = |\bar{b}_{\lambda 1}(t)|^2 = \{w^2 + \Omega_R^2 \exp(-\gamma t / 2)[\cos(\bar{a}t) + \gamma \sin(\bar{a}t) / 2\bar{a}]\}^2 / \bar{w}^4.$$

Для заселенности  $\bar{P}_2(t)$  и  $\bar{P}_3(t)$  состояний 2 и 3 частицы и поля излучения, содержащего  $N - 1$  фотонов  $\lambda$ , имеем следующие выражения:

$$\begin{aligned}\bar{P}_{02}(t) &= |\bar{b}_{02}(t)|^2 = \Omega_R^2 \exp(-\gamma t) \sin^2(\bar{a}t) / \bar{a}^2 \equiv \bar{P}_2(t), \\ \bar{P}_{03}(t) &= |\bar{b}_{03}(t)|^2 = w^2 \Omega_R^2 \{\exp(-\gamma t)[\cos^2(\bar{a}t) + \gamma^2 \sin^2(\bar{a}t) / 4\bar{a}^2 + \gamma \sin(2\bar{a}t) / 2\bar{a}] \\ &\quad - 2 \exp(-\gamma t / 2)[\cos(\bar{a}t) + \gamma \sin(\bar{a}t) / 2\bar{a}] + 1\} / \bar{w}^4 \equiv \bar{P}_3(t),\end{aligned}$$

где  $\bar{a} = \sqrt{\bar{w}^2 - \gamma^2 / 4}$ ,  $\bar{w}^2 > \gamma^2 / 4$ .

Согласно используемому формализму КТСС, вероятность найти частицу в начальном основном состоянии при рассеянии длительного импульса облучения складывается из условной вероятности регистрации неизменившегося состояния поля облучения (“необнаружения” фотона рассеянного света) и вероятности регистрации фотонов релеевского рассеяния света, т.е. зависимость от времени  $\bar{P}_1(t)$  заселенности основного состояния частицы представима такой суммой:

$$\bar{P}_1(t) = \bar{P}_{\lambda 1}(t) + \sum_{\sigma \neq \lambda} |\bar{b}_{\sigma 1}(t)|^2,$$

Используя условие нормировки

$$\bar{P}_2(t) + \bar{P}_3(t) + \bar{P}_{\lambda 1}(t) = 1$$

получаем:

$$\begin{aligned}\sum_{\sigma \neq \lambda} |\bar{b}_{\sigma 1}(t)|^2 &= 1 - \bar{P}_2(t) - \bar{P}_3(t) - \bar{P}_{\lambda 1}(t) \\ &= \Omega_R^2 \{1 - \exp(-\gamma t)[4\bar{w}^2 - \gamma^2 \cos(2\bar{a}t) + 2\bar{a}\gamma \sin(2\bar{a}t)] / 4\bar{a}^2\} / \bar{w}^2 \equiv \bar{P}_{(\sigma)1}(t)\end{aligned}$$

Величина  $\hbar \omega_{21} \dot{\bar{P}}_{(\sigma)1}(t)$  представляет собой скорость изменения энергии, рассеиваемой частицей, т.е. интенсивность релеевского рассеяния  $I_p(t)$ .

Используя полученные выражения  $\bar{P}_{(\sigma)1}(t)$  и  $\bar{P}_2(t)$ , находим, что имеет место равенство:

$$\hbar\omega_{21}\dot{\bar{P}}_{(\sigma)1}(t) \equiv I_p(t) = 2\gamma\hbar\omega_{21}\bar{P}_2(t),$$

позволяющее сделать заключение, что зависимость от времени интенсивности рассеиваемого частицей света определяется зависимостью от времени заселенности ее радиационного состояния, так же как это имеет место для спонтанной флуоресценции.

В установившемся режиме преобразования резонансного монохроматического излучения заселенности состояний частицы таковы:

$$\begin{aligned}\bar{P}_1(t=\infty) &= \bar{P}_{(\sigma)1}(t=\infty) + \bar{P}_{\lambda 1}(t=\infty) = (\Omega_R^2 \bar{w}^2 + w^4) / \bar{w}^4, \\ \bar{P}_2(t=\infty) &= 0, \quad \bar{P}_3(t=\infty) = w^2 \Omega_R^2 / \bar{w}^4, \quad \sum_{m=1,3} \bar{P}_m(t=\infty) = 1.\end{aligned}$$

### Динамика заселенности состояний частицы, Определяемая оптическими уравнениями Блоха

При рассмотрении преобразования частицей монохроматического света с частотой  $\omega_L = \omega_{21}$  система ОУБ будет рассматриваться в резонансном приближении при использовании матричного элемента оператора  $V$  по состояниям 1 и 2 частицы в виде  $V_{12} = i\hbar\Omega_R \exp(i\omega_{21}t)$ , где  $\Omega_R = \hbar^{-1}e_0(\hat{d}_x)_{12}$ ,  $(\hat{d}_x)_{12}$  – матричный элемент по состояниям частицы 1 и 2 проекции оператора  $\hat{d}$  на направление поляризации падающего света (оси  $X$ ),  $e_0$  – амплитуда напряженности электрического поля при предположении, что численное значение этой частоты Раби  $\Omega_R$  для рассматриваемого случая преобразования света частицей равно численному значению приведенной выше величины  $\Omega_R = \hbar^{-1}L^{-3/2}\sqrt{2\pi N\hbar\omega_{21}} \cdot (d_x)_{12}$ . При принятых допущениях и ограничениях относительно характеристик модели частицы и характера ее взаимодействия с полем излучения система ОУБ для элементов  $\rho_{mn} = b_m b_n^*$  матрицы плотности рассматриваемой частицы без учета “чисто фазовой релаксации” (см., например, [13]) имеет вид:

$$\begin{aligned}\dot{\rho}_{11} &= 2\gamma\rho_{22} + 2\Omega_R \operatorname{Re} \rho_{12}, \\ \dot{\rho}_{22} &= -2\gamma\rho_{22} - 2\Omega_R \operatorname{Re} \rho_{12} - 2w \operatorname{Im} \rho_{23}, \\ \dot{\rho}_{33} &= 2w \operatorname{Im} \rho_{23}, \\ \dot{\rho}_{12} &= -\gamma\rho_{12} - \Omega_R(\rho_{11} - \rho_{22}) + iw\rho_{13}, \\ \dot{\rho}_{23} &= -\gamma\rho_{23} - \Omega_R\rho_{13} + iw(\rho_{22} - \rho_{33}) = \dot{\rho}_{32}^*.\end{aligned}$$

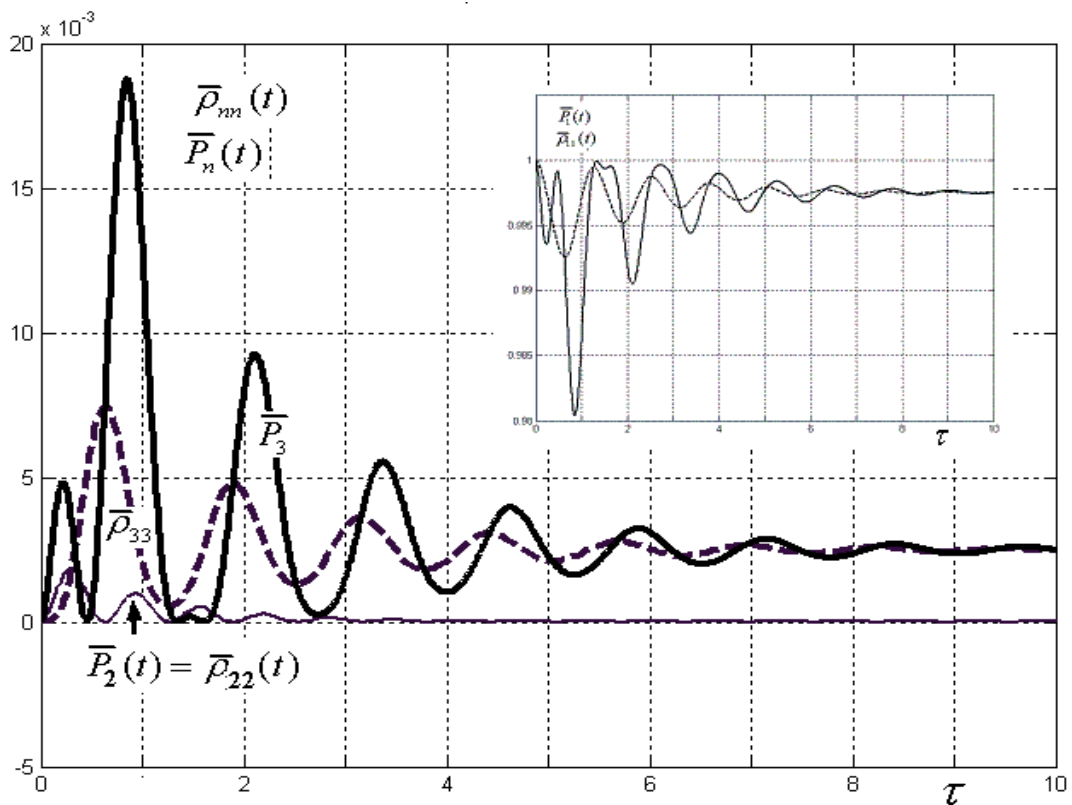
Форма записи уравнений (2) выбрана так, чтобы значение феноменологической константы  $\gamma$  в этих уравнениях совпадало с соответствующим значением константы  $\gamma$ , использованной в предыдущем разделе.

Установлено, что строгие решения  $\rho_{mn}(t)$ ,  $n=1\div 3$  этой системы уравнений при  $\Omega_R = 0$ , т.е. для рассматриваемого спонтанного излучения из начального состояния 2 и из начального состояния 3, совпадают с полученными выше функциями  $P_n(t)$  и, соответственно  $\tilde{P}_n(t)$  при равных значениях соответствующих констант  $\gamma$ ,  $w$ . Это установлено прямой подстановкой функций  $\rho_{mn}(t) = P_n(t)$ ,  $n=1\div 3$ ,  $\rho_{23}(t) = b_{02}(t)b_{03}^*(t)$  и  $\tilde{\rho}_{mn}(t) = \tilde{P}_n(t)$ ,  $n=1\div 3$ ,  $\tilde{\rho}_{23}(t) = b_{02}(t)\tilde{b}_{03}^*(t)$  в (2), а также следует из совпадения значений полученных функций  $P_n(t)$  и  $\tilde{P}_n(t)$  со значениями соответствующих функций  $\rho_{mn}(t)$  и  $\tilde{\rho}_{mn}(t)$ , найденных в результате численных решений системы ОУБ.

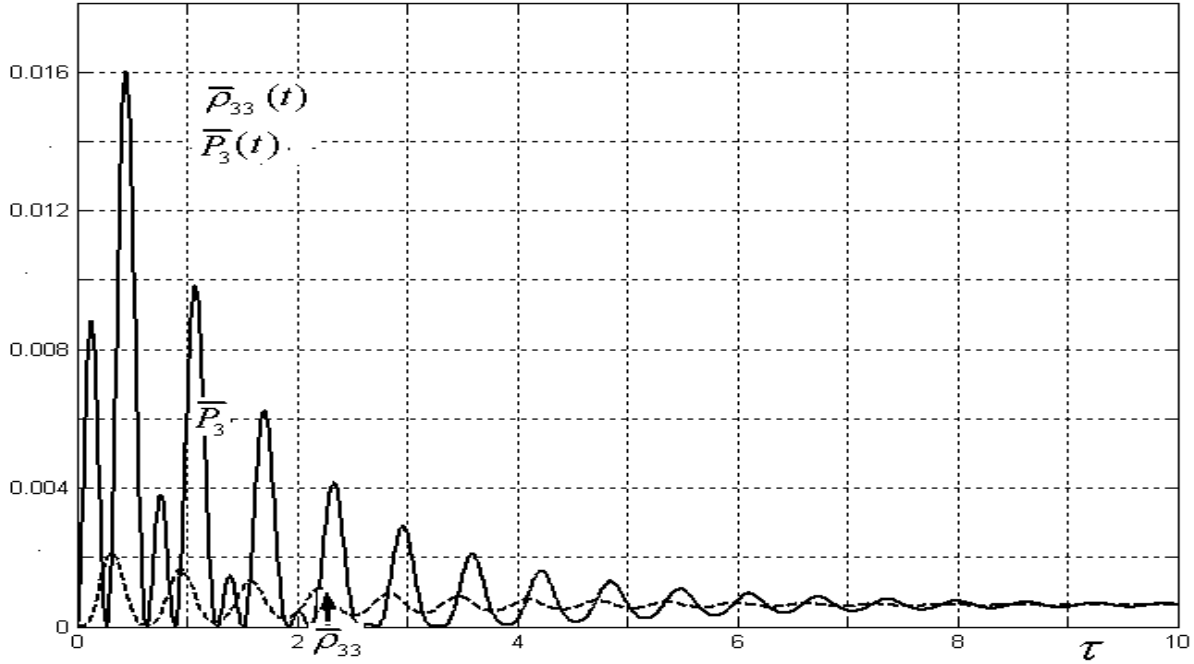
При рассмотрении рассеяния длительного импульса монохроматического света система уравнений ОУБ решалась численно для случая облучения частицы светом такой интенсивности, что  $\Omega_R = 0.25\gamma$ . Для частицы, у которой  $w = 5\gamma$ , полученные значения функций  $\bar{\rho}_{33}(t)$  и  $\bar{\rho}_{22}(t)$ , а также полученные выше функции  $\bar{P}_2(t)$  и  $\bar{P}_3(t)$ ,

приведены на рис. 4, а на рис. 5 приведены функции  $\bar{\rho}_{33}(t)$  и  $\bar{P}_3(t)$  для частицы, у которой  $w = 10\gamma$ . По оси ординат на этих рисунках отложены значения функций  $\bar{\rho}_{nn}(t)$  и  $\bar{P}_n(t)$ , а по оси абсцисс – время  $t$  в единицах  $\tau$ . Утолщенная сплошная кривая на рис. 4 изображает функцию  $\bar{P}_3(t)$ , а утолщенная штриховая кривая – функцию  $\bar{\rho}_{33}(t)$ . Тонкая сплошная кривая изображает функцию  $\bar{P}_2(t)$ . Эта кривая совпадает с кривой, изображающей функцию  $\bar{\rho}_{22}(t)$ , т.е.  $\bar{P}_2(t) = \bar{\rho}_{22}(t)$ . На рис. 5 сплошная кривая изображает функцию  $\bar{P}_3(t)$ , а штриховая кривая – функцию  $\bar{\rho}_{33}(t)$

Приведенные на Рис. 4 и на Рис. 5 изображения функций  $\bar{\rho}_{nn}(t)$  и  $\bar{P}_n(t)$  свидетельствуют о том, что для случая облучения частицы длительным импульсом монохроматического света результат моделирования динамики заселенности радиационного состояния 2 частицы с использованием формализма КТСС совпадает с результатом моделирования соответствующей динамики при использовании формализма ОУБ, а результаты моделирования динамики заселенности темного состояния 3 различаются. Изменения во времени заселенности состояния 3 согласно результату моделирования с использованием формализма ОУБ представляют собой начинающиеся от значения  $\bar{\rho}_{33}(t = 0) = 0$  плавно затухающие периодические колебания вокруг среднего значения  $\bar{\rho}_{33}(\infty) = 2.5 \cdot 10^{-3}$  с периодом  $\cong \gamma^{-1}$ , а с использованием формализма КТСС – относительно острые, по сравнению с изменениями функции  $\bar{\rho}_{33}(t)$ , всплески значений функции  $\bar{P}_3(t)$ , превышающие в максимуме размах колебаний функции  $\bar{\rho}_{33}(t)$  на начальном этапе ( $0 < t \leq 4 \cong \gamma^{-1}$ ) процесса рассеяния света частицей с постепенным приближением функции  $\bar{P}_3(t)$  к плавно затухающим периодическим колебаниям вокруг такого же среднего значения, как колебания функции  $\bar{\rho}_{33}(t)$ . При этом для частицы, у которой  $w = 5\gamma$ , вместо первого импульса  $\bar{\rho}_{33}(t)$  появляются два более острых импульса  $\bar{P}_3(t)$ , а для частицы, у которой  $w = 10\gamma$ , вместо первого, второго, третьего и



**Рис. 4.** Сравнение вида биений заселенности состояний частицы с  $w = 5\gamma$  при рассеянии монохроматического света по результатам моделирования двумя методами.



**Рис. 5.** Сравнение вида биений заселенности состояний частицы с  $w = 5\gamma$  при рассеянии монохроматического света по результатам моделирования двумя методами

четвертого импульсов  $\bar{\rho}_{33}(t)$  появляются по два более острых импульса  $P_3(t)$ , из которых второй намного более интенсивный, чем первый.

Аналогичное сравнение динамики заселенности начального состояния частицы, у которой  $w = 5\gamma$ , при облучении длительным импульсом монохроматического света при такой интенсивности, что  $\Omega_R = 0.25\gamma$ , приведено на вставке рисунка 4. По оси ординат на этой вставке отложены значения  $\bar{\rho}_{11}(t)$  и  $\bar{P}_1(t)$ , а по оси абсцисс – время  $t$  в единицах  $\tau$ . Так же, как и отмеченные выше изменения во времени заселенности состояния 3, изменения заселенности состояния 1, которые определены на основе формализма ОУБ, представляют собой плавно затухающие периодические колебания вокруг среднего значения  $\bar{\rho}_{11}(t) \cong 0.9975$  с периодом  $\cong \gamma^{-1}$ , а с использованием формализма КТСС – нерегулярные всплески  $\bar{P}_1(t)$  на начальном этапе рассеяния света частицей ( $0 < t \leq 4 \cong \gamma^{-1}$ ) с постепенным приближением функции  $\bar{P}_1(t)$  к плавно затухающим периодическим колебаниям вокруг такого же среднего значения с таким же периодом, как у функции  $\bar{\rho}_{11}(t)$ .

Заметим, что в работе [28] приведены выражения для стационарных значений заселенности состояний системы (2). Они имеют вид:

$$\bar{\rho}_{11}(t = \infty) = w^2 / \bar{w}^2, \quad \bar{\rho}_{22}(t = \infty) = 0, \quad \bar{\rho}_{33}(t = \infty) = \Omega_R^2 / \bar{w}^2,$$

т.е. отличаются от приведенных выше соответствующих выражений  $\bar{P}_n(t = \infty)$ , однако их численные значения совпадают с точностью до  $10^{-4}$  при одинаковых значениях  $\Omega_R$  и параметров частицы. Например, при  $w = 5\gamma$ ,  $\Omega_R = 0.25\gamma$  имеем:

$$\begin{aligned} \bar{P}_{(\sigma)1}(t = \infty) = \bar{\rho}_{33}(t = \infty) = \bar{P}_3(t = \infty) &= 0.0025, \\ \bar{P}_1(t = \infty) = \bar{\rho}_{11} &= 0.9975, \quad \bar{P}_{\lambda 1}(t = \infty) = 0.9950. \end{aligned}$$

## Обсуждение результатов

Результаты моделирования биений заселенности состояний при спонтанной флуоресценции рассмотренной трехуровневой частицы одинаковы, как при

применении формализма ОУБ, так и при применении формализма КТСС. Вид биений заселенности радиационного состояния определяет вид биений интенсивности спонтанной флуоресценции.

Для случая рассеяния импульса резонансного монохроматического облучения рассматриваемой трехуровневой частицей результаты моделирования биений заселенности состояний радиационного состояния частицы совпадают и при применении формализма КТСС и при применении формализма ОУБ. Вид биения заселенности этого состояния определяет вид биений интенсивности рассеянного света. Но результаты моделирования заселенности темного состояния и заселенности начального, основного состояния частицы при применении формализма КТСС и при применении формализма ОУБ существенно различаются: два импульса заселенности резкой формы с разной интенсивностью вместо каждого одного плавного импульса на начальном этапе процесса рассеяния. Исходя из вида полученных выражений для амплитуд заселенности темного состояния, можно заключить, что такая особенность импульсов заселенности темного состояния связана с проявлением интерференции вкладов в амплитуду этого состояния, один из которых является постоянным (и определяет установившееся значение заселенности рассматриваемого состояния), а другой затухает со временем по экспоненциальному закону.

Полученное согласно формализму КТСС выражение для заселенности начального, основного состояния частицы выглядит как отражение суммирования результатов регистрации заселенности начального состояния составной системы при “необнаружении” фотонов рассеянного света и результатов регистрации основного состояния частицы при детектировании фотонов релеевского рассеяния. В установившемся режиме рассеяния остаются отличными от нуля оба этих “вклада в заселенность” основного состояния частицы. В таком режиме устанавливается равновесное заселение темного и основного состояния частицы при том, что радиационное состояние не заселено. Как отмечено в [28] – оно “выключено” взаимно компенсирующимися вкладами в заселенность этого состояния со стороны импульса облучения и со стороны темного состояния. Заметим, что у трехуровневой частицы с диссипативной связью радиационного и темного состояния в установившемся режиме рассеяния длительного импульса монохроматического света полностью заселяется темное состояние [15–17].

### **Заключительные замечания**

Получены выражения, в аналитическом виде описывающие биения интенсивности спонтанной флуоресценции трехуровневой частицей, а так же рассеяния ею длительного импульса монохроматического облучения. Использование этих выражений при анализе соответствующих экспериментальных данных с целью определения характера фотофизических превращений различных квантовых точек и механизма фотохимических реакций отдельных молекул представляется более удобным и требующим меньше времени по сравнению с использованием при таком анализе численных решений соответствующих оптических уравнений Блоха. Результаты анализа экспериментальных данных динамики рассеяния частицей длительного импульса облучения могут рассматриваться как дополнительная информация, представляющая интерес для установления причины различий в деталях представления о преобразовании света квантовой частицей, которое используется в формализме теории составной системы, и представления, которое используется в формализме оптических уравнений Блоха. Например, такого аспекта этих представлений, как отмеченное “перепоглощение” фотонов рассеянного частицей длительного импульса облучения. В связи с этим отметим, что в последние годы

уделяется много внимания изучению возможности управления ходом фотопревращений молекул импульсом (или импульсами) света, с целью перевода молекулы из начального состояния в желаемое конечное состояние с минимальной потерей энергии и времени – “оптимальное квантовое управление” (см. обзор [29] со списком литературы в 771 наименований). Последние достижения такого управления отражены в отчете Общеввропейской комиссии по координации и поддержке работ по оптимальному квантовому управлению (“QUAINT”) [30]. Этот отчет отражает мнение 144 экспертов при ссылаках на 486 работ разных авторов в различных группах исследователей. Во многих из отмеченных в отчете работах в качестве существенного недостатка работ по оптимальному квантовому управлению отмечается недостаточно высокий уровень применяемой теории взаимодействия частицы со световым полем, в частности в отношении описания механизма дуального воздействия на частицу внешнего поля излучения и ее макроскопического окружения [31]. Иметь адекватное описание этого механизма необходимо при составлении программы применения оптимального квантового управления. Отметим также, что, как следует из полученных результатов, моделирование с использованием формализма теории составной системы, предоставляет возможность использования дополнительного ресурса достижения оптимального квантового управления: подбор параметров детектора поля вторичного излучения (макроскопического окружения) дополнительно к подбору параметров импульса облучения. Заметим, что при составлении программ применения оптимально-оптимального квантового контроля, которые создавались в отмеченных в отчете [30] работах, использовался формализм оптических уравнений Блоха (записываемых обычно в виде уравнений Линдблада). Имея это в виду, полученные в настоящей работе (так же, как в работах [15–17]) результаты моделирования на основе формализма теории составной системы можно рассматривать как вклад в изучение возможностей увеличения эффективности оптимального квантового управления за счет применения в его формализме такого представления о дуальном воздействии на частицу внешнего поля излучения и ее макроскопического окружения, которое является более совершенным по сравнению с применяемым при моделировании на основе оптических уравнений Блоха.

## Литература

1. Александров Е.Б., Хвостенко Г.И., Чайка М.П., Интерференция атомных состояний. // М.: Физматлит., 1991, 255 стр.
2. Rhodes W., Nonradiative Relaxation and Quantum Beats in the Radiative Decay Dynamics of Large Molecules. // J. Phys. Chem., 1983, **87** (1), 30-40.
3. Lendi K., Quantum beats in polyatomic molecules. // Chemical Physics, 1980, **46** (1), 179-190.
4. Papadopoulos G. J., Melas P., Photon Induced Tunneling Oscillations in a Double Quantum Well. // Foundations of Physics, 2001, **31** (1), 165-175.
5. Багрянский В.А., Боровков В.И., Молин Ю.И., Квантовые биения в радикальных парах. // Успехи химии, 2007, **76** (6), 535-549.
6. Герловин И.Я., Игнатъев И.В., Югова И.А., Masumoto Y., Квантовые биения состояний тонкой структуры в квантовых точках InP. // Оптика и спектр., 2008, **104** (4), 640-652.
7. Далидчик Ф.И., Кубарев С.И., Пономарев О.А., Квантовые биения туннельной проводимости наноконтактов. // Хим. физика., 2009, **28** (10), 18-27.
8. Цуканов А.В., Катеев И.Ю., Квантовые вычисления на квантовых точках в полупроводниковых микрорезонаторах. Часть II. // Микроэлектроника, 2014, **43** (6), 403-414.
9. Леонов М.Ю., Турков В.К., Рухленко И.Д., Федоров Ф.В., Кинетика термализованной люминесценции одиночной квантовой точки при комнатной температуре. // Оптика и спектр., 2012, **113** (3), 288-294; 295-300.
10. Федоров А.В., Рухленко И.Д., Баранов А.В., Кручинин С.Ю., Оптические свойства полупроводниковых квантовых точек. // СПб: Наука, 2011, 188 стр.
11. Осадько И.С., Селективная спектроскопия одиночных молекул. // М.: ФИЗМАТЛИТ, 2000, 320 стр.

12. *Plenio M.B., Knight P.L.*, The quantum-jump approach to dissipative dynamics in quantum optics. // *Reviews of Modern Physics*, 1998, **70** (1), 101-144.
13. *Скалли М.О., Зубайри М.С.* Квантовая оптика. // М.: ФИЗМАТЛИТ, 2003, 504 стр.
14. *Менский М. Б.*, Квантовые измерения, феномен жизни и стрела времени: связи между “тремя великими проблемами” (по терминологии Гинзбурга). // *Успехи физ. наук*, 2007, **177** (4), 415-425.
15. *Морозов В.А., Чувылкин Н.Д., Смоленский Е.А.*, О применимости оптических уравнений Блоха к моделированию динамики фотохимических реакций. // *Докл. РАН.*, 2015, **461** (3), 300-302.
16. *Морозов В.А., Чувылкин Н.Д., Смоленский Е.А.*, Моделирование динамики заселенности состояний трехуровневой молекулы в поле монохроматической световой волны. // *Хим. Физика*, 2015, **34** (11), 3-10.
17. *Морозов В.А.*, Математическое моделирование динамики заселенности состояний трехуровневой наночастицы при спектроскопических переходах. // *Наноструктуры. Математическая физика и моделирование*, 2016, **14** (2), 69-83.
18. *Макомбер Дж.*, Динамика спектроскопических переходов. // М.: МИР, 1979, 347 стр.
19. *Баранов В.И., Грибов Л.А.*, Моделирование кинетики внутримолекулярных процессов и нестационарных спектров с учетом безызлучательных переходов. // *ЖПС.*, 2004, **71** (4), 412-428.
20. *Грибов Л.А., Баранов В.И.* Теория и методы расчета молекулярных процессов: спектры, химические превращения и молекулярная логика. // М.: КомКнига, 2006, 474 стр.
21. *Нильсен М., Чанг И.* Квантовые вычисления и квантовая информация. // Москва, “МИР”, 2006, 822 стр.
22. *Медведев Э.С.*, Неэкспоненциальное затухание флуоресценции многоатомных молекул // *Успехи физ. наук*, 1991, **161** (1), 31-70.
23. *Гайтлер В.* Квантовая теория излучения. // М.: Изд-во иностр. лит., 1956, 491 стр.
24. *Морозов В.А., Шорыгин П.П.*, Резонансное преобразование света и динамика молекулярных переходов // *Журн. физ. химии*, 1990, **64** (2), 289-307.
25. *Морозов В.А., Шорыгин П.П.*, Форма и спектр импульсов резонансного комбинационного рассеяния света и других компонент вторичного излучения многоатомными молекулами. I. Общие выражения. // *Оптика и спектр.*, 1987, **63** (6) 1235-1242.
26. *Фейнман Р., Хибс А.*, Квантовая механика и интегралы по траекториям. // Москва. “МИР”, 1968, 382 стр.
27. *Mollow B.R.*, Pure-state analysis of resonant light scattering: Radiative damping, saturation, and multiphoton effects. // *Phys. Rev.*, 1975, **A12**, 1919-1943.
28. *Морозов В.А., Дубина Ю.М.*, Математическое моделирование динамики заселенности “темных” состояний трехуровневой системы. // *Оптика и спектр.*, 2012, **112** (5), 716-722.
29. *Brif C., Chakrabarti R., Rabitz H.*, Control of quantum phenomena: Past, present, and future. // *New J. Phys.*, 2010, **12**, 075008, 76 pp.
30. *Glaser S. J., Boscain U., Calarco T., Koch C.P. et al.*, Training Schrödinger’s cat: quantum optimal control. // *Eur. Phys. J.*, 2015, **D69** (12), 1-24.
31. *Gao F., Rey-de-Castro R., Wang Y., Rabitz H., Shuang F.*, Identifying a cooperative control mechanism between an applied field and the environment of open quantum systems. // *Phys. Rev.*, 2016, **A93**, 053407, 11 pp.

**MATHEMATICAL MODELING OF QUANTUM  
BEATS OF POPULATION OF STATES  
OF THREE-LEVEL NANOPARTICLES  
AT THE SPONTANEOUS FLUORESCENCE AND  
THE SCATTERING OF MONOCHROMATIC LIGHT**

V. A. Morozov

*N. D. Zelinsky Institute of organic chemistry Russian Academy of Sciences, Moscow*

morozov@mail.ioc.ac.ru

Received 08.10.2017

Through the use of solutions of the Schrödinger equation for a composite system of a three-level model of nanoparticles and associated quantized radiation field the expressions are derived which in an analytical form describe the beating of the particle states population at spontaneous emission for the case of initial excitation of the nanoparticles in its radiation state and at excitation in its non-radiative state associated dynamic interaction with a radiation state. The simulation is performed also of the dynamics of the state population of such a particle at the scattering long pulse of monochromatic radiation. It is established that the obtained expressions for the dynamics of the populations of all the states of the particles during spontaneous radiation are exact solutions of the corresponding system of optical Bloch equations. The simulation results of the particle states population dynamics at scattering are consistent with the results of the simulation based on the Bloch equations for the population of the radiative states, but differ substantially for the population of dark and ground particle states in the initial stage of scattering of the pulse irradiation. This explanation of the origin of such similarities and differences.