

# МАТЕМАТИЧЕСКОЕ МОДЕЛИРОВАНИЕ ДИНАМИКИ ЗАСЕЛЕННОСТИ СОСТОЯНИЙ ДВУХУРОВНЕВОЙ НАНОЧАСТИЦЫ ПРИ БИХРОМАТИЧЕСКОМ ОБЛУЧЕНИИ

В.А. Морозов

*Институт органической химии им. Н.Д. Зелинского  
Российской академии наук, Москва  
E-mail: morozov@mail.ioc.ac.ru*

Поступила 10.12.2018

Получены выражения, в аналитическом виде описывающие динамику заселенности состояний составной системы из двухуровневой частицы и квантованного бихроматического электромагнитного поля, обратимо обменивающегося энергией с этой частицей, для случая, когда средняя частота монохроматических компонент поля совпадает с частотой собственного перехода частицы, а амплитуды колебаний электрического поля этих компонент одинаковы при произвольной разности их начальных фаз. Полученные выражения существенно отличаются от известных из литературы выражений для зависимости от времени заселенности соответствующих состояний частицы, которые различными способами получены разными авторами на основе использования классической теории при описании бихроматического поля, действующего на частицу как на замкнутую квантовую систему. Отмечаются также значительные отличия характера установленной динамики заселенности состояния системы, соответствующего возбужденному состоянию частицы, от характера динамики заселенности возбужденного состояния частицы, которая определена численными решениями соответствующих оптических уравнений Блоха. Приведены рисунки, иллюстрирующие эти отличия на примерах ряда конкретных случаев бихроматического облучения с разной интенсивностью и разной относительной начальной фазы его монохроматических компонент.

УДК 535.14

DOI: 10.31145/2224-8412-2018-18-2-05-21

## **Введение**

Результаты теоретического и экспериментального изучения возбуждения вещества светом, содержащим когерентную совокупность двух монохроматических волн с разными частотами, отражены во многих работах, ссылки на которые приведены, например, в обзорах [1, 2] и монографиях [3, 4]. В этих работах отмечаются различные особенности спектральных характеристик вторичного излучения отдельной частицы при ее бихроматическом облучении,

отличающие их от известных соответствующих характеристик при облучении частицы монохроматическим светом, и такие новые эффекты, как когерентное пленение населенностей состояний вещества и когерентный фотогальванический эффект. Изменение характера динамики возбуждения частицы в зависимости от разницы начальных фаз монохроматических компонент облучения в ряде работ предложено рассматривать как одну из возможностей выбора того или иного возможного варианта фотопревращения вещества. Список из 46 наименований работ по теоретическому изучению и практическому применению такого «метода управления фотореакциями» приведен в [4].

Заметим, что в приведенных в [1–4] работах зависимость от времени заселенности возбуждаемого состояния двухуровневой частицы бихроматическим полем («динамики возбуждения») описывалась при применении классической теории электромагнитного поля, хотя использовалась терминология квантовой теории поля излучения: однофотонное, двухфотонное и т. д. поглощение облучения. Среди таких работ отметим работы [5–7], в которых приводятся выражения для динамики заселенности состояний частицы, полученные на основе решения уравнения Шредингера для амплитуд заселенности состояний частицы как замкнутой квантовой системы в том или ином приближении с принятием ряда упрощающих расчеты допущений, и работу [8], в которой выражение для динамики заселенности возбужденного состояния частицы получено решением (при использовании теоремы Флоке) системы оптических уравнений Блоха («ОУБ»).

Более последовательное и полное представление о возбуждении частицы бихроматическим электромагнитным полем может быть составлено на основе использования теории, рассматривающей частицу как открытую квантовую систему в составной (общей) системе из частицы и обменивающегося с ней энергией квантованного поля излучения (см., например, в [9] и приведенную в этом обзоре литературу). Представляет интерес сопоставить результаты моделирования динамики заселенности состояний такой составной системы с результатами моделирования динамики заселенности состояний частицы на основе формализма полуклассической теории, которые получены в [5–8] и использованы при описании данных экспериментального изучения динамики возбуждения атомов Ва в работе [10] и атомов Yb в работе [11].

Отметим, что в работах [12,13] проведено сравнение аналитических выражений для зависимости от времени заселенности состояний составной системы из двухуровневой частицы и монохроматического поля облучения с выражениями для временной зависимости соответствующих состояний частицы, которые получены на основе формализма полуклассической теории. Эти выражения существенно различаются. Анализ причин и результатов такого различия позволяет, например, более обоснованно относить какую-либо рассматриваемую фотореакцию или к обычно происходящему процессу

преобразования одного из фотонов облучения, описываемому результатами моделирования такого процесса на основе формализма квантовой теории составной системы («КТСС»), или к процессу каскадного преобразования частицей фотонов многофотонного облучения, описываемому результатами моделирования такого процесса на основе формализма ОУБ (см. в [12,13]).

Анализ сравнения результатов моделирования динамики возбуждения двухуровневой частицы при *бихроматическом* облучении на основе формализма КТСС и на основе формализма полуклассической теории применительно к интерпретации соответствующих экспериментальных данных позволит составить более полное и более точное представление о механизме происхождения перечисленных выше новых эффектов возбуждения вещества светом, содержащим когерентную совокупность двух монохроматических волн, и составить более обоснованную интерпретацию известных экспериментальных данных отмеченных выше работ [10,11]. Получение такого представления можно рассматривать как вклад в развитие и совершенствование теоретических основ метода управления фотопревращениями вещества выбором начальной относительной фазы монохроматических компонент бихроматического облучения.

Заметим, что при использовании формализма КТСС получение в аналитическом виде решения уравнения Шредингера для амплитуд заселенности состояний составной системы из частицы, сфазированного бихроматического облучения и вторичного излучения, связано с решением комплексного алгебраического уравнения третьей степени, мнимые коэффициенты которого отражают учет радиационного распада возбуждаемого собственного состояния частицы при «непрерывной» регистрации состояний поля излучения за счет поглощения фотонов естественным макроскопическим окружением или специально устанавливаемыми детекторами счета фотонов (см. в [9]). Нахождение решения такого уравнения сопряжено с громоздкими вычислениями. Однако для часто рассматриваемых случаев бихроматического облучения двухуровневой частицы, когда разность частот монохроматических компонент облучения много больше радиационной ширины резонансно возбуждаемого уровня частицы, начальные общие представления о сходстве или различия результатов моделирования динамики возбуждения частицы при использовании формализма КТСС и формализма полуклассической теории, можно относительно легко получить, не принимая во внимание радиационный распад возбуждаемого состояния частицы. Это обусловлено тем, что при моделировании динамики возбуждения частицы с таким допущением об обратимом обмене энергией между бихроматическим полем и частицей, отмеченное выше комплексное уравнение третьей степени становится действительным и к тому же так упрощается, что его решения можно относительно легко получить в аналитическом виде. На основе использования

такого решения в настоящей работе получены выражения для зависимости от времени заселенности состояний рассматриваемой составной системы применительно к случаю бихроматического облучения, при котором средняя частота его монохроматических компонент совпадает с частотой собственного перехода частицы, а амплитуды колебаний электрического поля этих компонент одинаковы при произвольной разности их начальных фаз. Соответствующая модель составной системы и постановка задачи описана в следующей, второй части работы. Получение выражений, описывающих зависимость от времени заселенности состояний составной системы описано в третьей части работы. В четвертой части – описан подход к рассмотрению динамики заселенности состояний частицы на основе формализма оптических уравнений Блоха. В пятой части выражение для зависимости от времени заселенности состояния системы, при котором поле содержит на один фотон меньше поля облучения в момент включения взаимодействия с частицей, а частица находится в возбужденном состоянии, сравнивается с временной зависимостью заселенности возбужденного состояния частицы, полученной численным решением соответствующей системы ОУБ. Заканчивается работа заключительным замечанием.

### Модель составной системы

Будем полагать, что место расположения частицы характеризуется центром декартовой системы координат  $(X, Y, Z)$ . Пусть, для определенности, облучение направлено по оси  $Z$  и поляризовано по оси  $X$ .

Как уже отмечено во Введении, в работах [5–8] рассматривалось возбуждение частицы бихроматическим облучением, амплитуды монохроматических компонент которого одинаковы, а их частоты  $\omega_L \pm \Omega$  таковы, что  $\omega_L \gg \Omega$ . Вводился в рассмотрение относительный начальный фазовый сдвиг этих компонент.

Напряженность электрической составляющей поля такого облучения в месте расположения частицы запишем в виде

$$e(t) = e_0 \{ \sin[(\omega_L + \Omega)t + \varphi] - \sin[(\omega_L - \Omega)t - \varphi] \} = 2e_0 \sin(\Omega t + \varphi) \cos(\omega_L t), \quad t \geq 0,$$

так что  $2\varphi$  – это разность начальных фаз монохроматических компонент поля облучения,  $\varphi$  начальная фаза амплитуды полной «синусоидальной» модуляции амплитуды поля облучения,  $\Omega$  – частота этой модуляции.

Для среднего по «быстрому» времени  $t \approx \omega_L^{-1}$  значения интенсивности (плотности потока энергии) облучения частицы имеем следующее выражение:

$$I_{кл}(t) = ce_0^2 (4\pi)^{-1} [1 - \cos(2\Omega t + 2\varphi)],$$

отражающее зависимость начальной интенсивности в момент  $t = 0$  этого облучения от разницы начальных фаз его монохроматических компонент.

Схема относительного положения уровней энергии модели частицы и монохроматических компонент облучения представлена на рисунке 1.

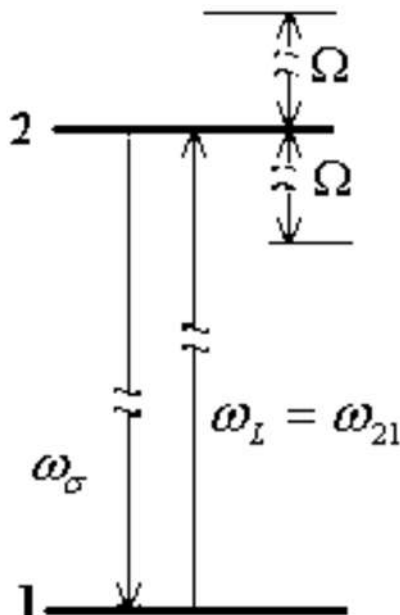


Рис. 1. Схема относительного положения уровней энергии модели частицы и монохроматических компонент облучения.

Основное собственное состояние двухуровневой модели частицы пронумеровано цифрой 1, а возбужденное собственное состояние – цифрой 2. Энергии этих состояний обозначим  $E_1$  и  $E_2$ ;  $E_2 - E_1 \equiv \hbar\omega_{21}$ . Матричный элемент оператора взаимодействия поля облучения и частицы по состояниям 1 и 2 в дипольном приближении запишем в виде:  $V_{12} = -(ed_x)_{12}$ , где  $d_x$  – проекция вектора дипольного момента частицы на ось  $X$ ;  $(d_x)_{12} \equiv e_0^{-1}\hbar\Omega_R$ ,  $\Omega_R$  – частота Раби; для простоты записи опущено указание на зависимость от времени функции  $e(t)$  и соответственно  $V(t)$ .

Прежде чем привести описание состояния квантованного бихроматического поля, зависимость от времени интенсивности которого – обозначаемую как  $I_{кв}(t)$  – имеет такой же вид, как приведенная функция  $I_{кл}(t)$ , отметим некоторые общие характеристики квантованного электромагнитного поля.

Прежде всего заметим, что электромагнитное поле, соответствующее состоянию с определенным числом фотонов («фоковское» состояние), характеризуется полностью неопределенным значением его фазы, (т.е. равновероятным между значениями 0 и  $2\pi$  – см., например, в [14]), а в работе [15] приведено доказательство «отсутствия определенного значения разности фаз у фотонов в фоковских состояниях», так что интенсивность соответствующего электромагнитного поля не зависит от времени. Для описания

поля, интенсивность которого меняется со временем, можно использовать представление о суперпозиционном состоянии фотона. Например, полю, состояние которого представляет собой суперпозицию двух однофотонных состояний

$$|\phi\rangle = A_\lambda |\phi_\lambda\rangle + A_\nu |\phi_\nu\rangle, \quad |A_\lambda|^2 + |A_\nu|^2 = 1,$$

соответствует интенсивность (квантовое среднее значение плотности потока энергии в центре куба периодичности объема  $L^3$ ) такого вида:

$$I_{\kappa\sigma}(t) \approx cL^{-3}\hbar\omega_L [1 + 2 \operatorname{Re} A_\lambda A_\nu^* \exp(-2i\Omega t)],$$

где  $|\phi_\lambda\rangle, |\phi_\nu\rangle$  – однофотонное состояние,  $\lambda, \nu$  – набор квантовых чисел, характеризующих направление распространения и состояние поляризации фотона «сорта»  $\lambda, \nu$  при предположении, что векторы поляризации линейно поляризованных фотонов  $\lambda$  и  $\nu$  параллельны, а их частоты таковы, что  $\omega_L = \omega_\lambda - \Omega = \omega_\nu + \Omega$ ,  $\Omega \ll \omega_L$ .

В работе [16] показано, что интенсивность поля, каждый из  $N > 1$  фотонов которого находится в приведенном выше суперпозиционном состоянии, равна  $NI_{\kappa\sigma}(t)$ . Используя это заключение, будем полагать, что в рассматриваемом нами бихроматическом поле состояние каждого из  $N$  фотонов представляет собой суперпозицию однофотонных состояний  $|\phi_\lambda\rangle$  и  $|\phi_\nu\rangle$  следующего вида:

$$|\phi(\varphi)\rangle = (\sqrt{2})^{-1} [\exp(i\varphi) |\phi_\lambda\rangle - \exp(-i\varphi) |\phi_\nu\rangle],$$

так что при  $\omega_L = \omega_{21}$  интенсивность этого поля определяется таким выражением

$$I_{\kappa\sigma}(t) \approx cNL^{-3}\hbar\omega_{21} [1 - \cos(2\Omega t + 2\varphi)],$$

и при  $NL^{-3}\hbar\omega_{21} = e_0^2(4\pi)^{-1}$  имеем  $I_{\kappa\sigma}(t) = I_{\kappa\lambda}(t) \equiv I_0(t)$ .

Ограничимся рассмотрением поглощения частицей, находящейся в начальный момент времени  $t = 0$ , одного из фотонов бихроматического поля, состояние которого определяется приведенной выше суперпозицией однофотонных состояний. Рассматриваемые состояния составной системы обозначим индексами  $\lambda 1, \nu 1, 02, \sigma 1$  ( $\sigma \neq \lambda, \nu$ ). Состояние  $\lambda 1$  означает, что частица находится в состоянии 1, а поле облучения содержит  $N$  фотонов сорта  $\lambda$ ; состояние  $\nu 1$  означает, что частица находится в состоянии 1, а поле облучения содержит  $N$  фотонов сорта  $\nu$ ; состояние  $02$  означает, что частица находится в состоянии 2, а поле излучения содержит  $N - 1$  фотонов облучения; состоя-



ние  $\sigma 1$  означает, что частица находится в состоянии 1, а поле содержит  $N - 1$  фотонов облучения и фотон сорта  $\sigma$  вторичного излучения.

Матричный элемент оператора  $V$  по состояниям  $\lambda 1$  и  $0 2$  записываем в виде:  $V_{\lambda 1}^{0 2} = iL^{-3/2} \sqrt{2\pi N \hbar \omega_\lambda} (d_\lambda)_{12} \equiv i\hbar \bar{\Omega}_R$ , где  $d_\lambda$  – проекция оператора дипольного момента частицы на направление поляризации фотона  $\lambda$ . Аналогично выглядит выражение для матричного элемента оператора  $V$  по состояниям  $\nu 1$  и  $0 2$ . Учитывая принятое соотношение  $\omega_\lambda \equiv \omega_\nu \equiv \omega_L = \omega_{21}$  и полагая, что  $d_\lambda = d_\nu = d_x$ , будем считать, что  $V_{\lambda 1}^{0 2} = V_{\nu 1}^{0 2}$ . При сопоставлении результатов моделирования динамики заселенности состояний частицы на основе формализма ОУБ с результатами моделирования динамики заселенности состояний рассматриваемой составной системы, проведенного на основе формализма КТСС, будем полагать, что  $\bar{\Omega}_R = \Omega_R$ .

### Использование теории составной системы

Уравнение Шредингера для амплитуды вероятности  $b_k(t)$  заселенности собственного состояния  $k$  составной системы в представлении взаимодействия запишем в виде

$$i\hbar \dot{b}_k(t) = \sum_j b_j(t) \cdot V_{kj} \exp(i\omega_{kj} t) + i\hbar \delta_{ki} \delta(t) b_k(0),$$

где  $i, j, k$  – индексы собственных состояний составной системы с энергией соответственно  $E_i, E_j, E_k$ ;  $i$  – одно из начальных собственных состояний  $\lambda 1$  или  $\nu 1$ , взятого с множителем  $(\sqrt{2})^{-1} \exp(i\varphi)$  или, соответственно, с множителем  $-(\sqrt{2})^{-1} \exp(-i\varphi)$ ;  $\omega_{ki} = \hbar^{-1}(E_k - E_i)$ ;  $\delta_{ki} = 0$  при  $k \neq i$  и  $\delta_{ki} = 1$  при  $k = i$  (символ Кронекера);  $t$  – время, отсчитываемое от значения  $t = 0$ ;  $\delta(t)$  – функция Дирака.

Фурье-представление функции  $b_k(t)$  запишем в виде

$$b_k(t) = i(2\pi)^{-1} \int_{-\infty}^{+\infty} G_{ki}(E) \cdot \exp[i(E_k - E)t / \hbar] dE,$$

где  $E$  – энергетическая переменная.

Функции  $G_{ki}(E)$  для рассматриваемых состояний составной системы в резонансном приближении (см. [17]) записываются (опуская для простоты записи индекс начального состояния) в виде:

$$(E - E_{\lambda 1})G_{\lambda 1}(E) = V_{\lambda 1}^{0 2} G_{0 2} + (\sqrt{2})^{-1} \exp(i\varphi),$$

$$(E - E_{\nu 1})G_{\nu 1}(E) = V_{\nu 1}^{0 2} G_{0 2} - (\sqrt{2})^{-1} \exp(-i\varphi),$$

$$(E - E_{0 2})G_{0 2}(E) = V_{0 2}^{\lambda 1} G_{\lambda 1} + V_{0 2}^{\nu 1} G_{\nu 1} + \sum_{\sigma} V_{0 2}^{\sigma 1} G_{\sigma 1},$$

$$(E - E_{\sigma 1})G_{\sigma 1}(E) = V_{\sigma 1}^{0 2} G_{0 2}.$$

При решении этой системы уравнений используем обычно вводимое 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  $1/E$ . Реальная часть  $\gamma$  представляет собой радиационную ширину уровня 2 частицы, а мнимая часть («лэмбовский сдвиг» уровня энергии возбужденного состояния частицы) не учитывается (см. [17]). При этом решение, например,  $G_{02}(E)$  имеет вид:

$$G_{02}(E) = \frac{\sqrt{2}\Omega_R}{\hbar} \frac{\omega \sin\varphi + i\Omega \exp(i\varphi)}{\omega(\omega - 2\Omega)(\omega - \Omega + i\gamma) - 2\Omega_R^2(\omega - \Omega)},$$

где  $\omega \equiv \hbar^{-1}(E - E_{\lambda 1})$ .

При вычислении соответствующей амплитуды  $b_{02}(t)$ , например, методом контурного интегрирования, необходимо представить знаменатель функции  $G_{02}(E)$  в виде произведения  $(\omega - \omega_1)(\omega - \omega_2)(\omega - \omega_3)$ , где  $\omega_1, \omega_2, \omega_3$  – корни алгебраического уравнения третьей степени с комплексными коэффициентами. Нахождение этих корней требует проведения громоздких вычислений. Если, однако, ограничиться рассмотрением динамики возбуждения состояния 02 при облучении, которое характеризуется неравенством  $\Omega \gg \gamma$ , и полагать  $\gamma = 0$ , т.е. пренебрегать рассеянием фотона в моды свободного (нулевого) поля излучения и учитывать только обратимый процесс обмена энергией между двухмодовым полем облучения и частицей, тогда знаменатель функции  $G_{02}(E)$  и функций  $G_{\lambda 1}(E), G_{\nu 1}(E)$  можно представить в следующем виде:

$$F(\omega) = \hbar(\omega - \Omega)[\omega(\omega - 2\Omega) - 2\Omega_R^2] = \hbar(\omega - \Omega)(\omega - \Omega - \tilde{\Omega})(\omega - \Omega + \tilde{\Omega}),$$

где  $\tilde{\Omega} \equiv \sqrt{\Omega^2 + 2\Omega_R^2}$ , и в качестве решения системы уравнений для  $G_{ki}(E)$  получаем следующие выражения:

$$G_{\lambda 1}(\omega) = [(\sqrt{2})^{-1} \exp(i\varphi)(\omega - \Omega)(\omega - 2\Omega) - \sqrt{2}\Omega_R^2 \cos\varphi] / F(\omega),$$

$$G_{\nu 1}(\omega) = [-(\sqrt{2})^{-1} \exp(-i\varphi)\omega(\omega - \Omega) + \sqrt{2}\Omega_R^2 \cos\varphi] / F(\omega),$$

$$G_{02}(\omega) = -i\sqrt{2}\Omega_R [i\omega \sin\varphi - \Omega \exp(i\varphi)] / F(\omega).$$

При переходе к комплексному представлению  $\omega \rightarrow \omega + i\varepsilon \equiv z$  функция  $F(z)$  имеет три полюса первого порядка при  $z_1 = -i\varepsilon + \Omega$ ,  $z_2 = -i\varepsilon + \Omega + \tilde{\Omega}$ ,  $z_3 = -i\varepsilon + \Omega - \tilde{\Omega}$ .

Используя полученные при таком переходе функции  $G_{\lambda 1}(z), G_{02}(z), G_{\nu 1}(z)$ , и применяя правила контурного интегрирования, находим с учетом перехода



$\varepsilon \rightarrow 0$  соответствующие амплитуды рассматриваемых состояний, являющиеся решением уравнения Шредингера для составной системы:

$$b_{\lambda_1}(t) = \frac{\exp(-i\Omega t)}{\sqrt{2} \tilde{\Omega}^2} \{2\Omega_R^2 \cos\varphi + [\tilde{\Omega}^2 \exp(i\varphi) - 2\Omega_R^2 \cos\varphi] \cos \tilde{\Omega} t, \\ + i\Omega \tilde{\Omega} \exp(i\varphi) \sin \tilde{\Omega} t\} = -b_{\nu_1}^*(t) \\ b_{0_2}(t) = -i\sqrt{2} \frac{\Omega_R}{\tilde{\Omega}^2} [\Omega \cos\varphi(1 - \cos \tilde{\Omega} t) + \tilde{\Omega} \sin\varphi \sin \tilde{\Omega} t].$$

Динамика заселенности начального состояния частицы в процессе поглощения ею фотона облучения определяется следующим выражением:

$$P_1(t) = |b_{\lambda_1}(t)|^2 + |b_{\nu_1}(t)|^2 = 1 - P_{0_2}(t),$$

где  $P_{0_2}(t)$  – динамика состояния системы из частицы в возбужденном состоянии и поля излучения, содержащего  $N - 1$  фотонов. Функция  $P_{0_2}(t)$  имеет следующий вид:

$$P_{0_2}(t) = |b_{0_2}(t)|^2 = \\ = 2\Omega_R^2 \tilde{\Omega}^{-4} [\Omega^2 (1 - \cos \tilde{\Omega} t)^2 \cos^2 \varphi + \Omega \tilde{\Omega} (1 - \cos \tilde{\Omega} t) \sin 2\varphi \sin \tilde{\Omega} t + \tilde{\Omega}^2 \sin^2 \varphi \sin^2 \tilde{\Omega} t].$$

Как следует из сравнения приведенных выше функций  $I_0(t)$  и  $P_{0_2}(t)$ , зависимость от времени заселенности возбужденного состояния частицы отличается от зависимости от времени интенсивности облучения частицы. Отличие этих зависимостей определяется тем, что частота  $\tilde{\Omega}$  отличается от частоты  $\Omega$ , так что в зависимости от условия облучения, характеризуемого отношением  $\alpha = \Omega_R / \Omega$  и значением начальной фазы  $\varphi$ , частота осцилляций функции  $P_{0_2}(t)$  меньше частоты осцилляций функции  $I_0(t)$  при  $\Omega_R < \Omega$  (в предельном случае  $\Omega_R \ll \Omega$  – в два раза меньше), и больше – при  $\Omega_R > \Omega$ .

Полученные выражения  $P_1(t)$  и  $P_{0_2}(t)$  существенно отличаются от выражений, определяющих зависимости от времени заселенности состояний частицы, которые получены разными способами в работах [5–7] на основе использования полуклассической теории преобразования света частицей при принятых выше допущениях относительно параметров классически описываемого поля облучения и при пренебрежении рассеянием фотона в моды свободного поля излучения.

### Оптические уравнения блоха

Систему ОУБ для элементов  $\rho_{nm}(t)$  матрицы плотности частицы как замкнутой квантовой системы, возмущаемой внешним полем  $e(t)$ , без учета радиационного распада ее возбужденного состояния запишем в виде:

$$\dot{\rho}_{mm} = i\hbar^{-1} \sum_{l \neq m} (V_{lm} \rho_{ml} - V_{ml} \rho_{lm}),$$

$$\dot{\rho}_{nm} = i\hbar^{-1} \sum_{l=n,m} (V_{lm} \rho_{nl} - V_{nl} \rho_{lm}), \quad (n \neq m).$$

Здесь для простоты записи опущено указание на зависимость элементов  $\rho_{nm} = b_n b_m^*$  от времени;  $n, m$  и  $l$  – номера собственных состояний частицы, которые принимают значения 1 или 2; оператор энергии взаимодействия частицы с полем  $V = -e(t)d_x$ ;  $b_n$  и  $b_m$  – амплитуды вероятности заселенности состояний  $n$  и  $m$ .

Пренебрегая в приведенной системе ОУБ слагаемыми, которые содержат множители, осциллирующие с частотой  $2\omega_{21} + \Omega$  и  $2\omega_{21} - \Omega$  по сравнению со слагаемыми, осциллирующими с частотой  $\Omega$ , имеем систему ОУБ для рассматриваемой частицы в «приближении вращающейся волны»:

$$\dot{\rho}_{11} = i\Omega_R \sin(\Omega t + \varphi) (\rho_{21} - \rho_{12}) = -\dot{\rho}_{22},$$

$$\dot{\rho}_{21} = i\Omega_R \sin(\Omega t + \varphi) (\rho_{22} - \rho_{11}) = -\dot{\rho}_{12}.$$

Такое приближение соответствует «резонансному приближению», использованному при решении уравнения Шредингера для составной системы в предыдущей части работы.

Согласно формализму ОУБ зависимость  $\rho_{22}(t)$  описывает динамику возбуждения частицы как замкнутой квантовой системы, находящейся под действием поля облучения, состояние которого не изменяется. Согласно же используемым представлениям формализма КТСС (подробности см. в [9] [13]) – выражение  $P_{02}(t)$  отражает информацию не только о заселенности возбужденного состояния частицы, но и информацию о состоянии поля излучения. Такая информация определяется возможностью «непрерывной», в каждый момент времени  $t$ , «мгновенной» регистрации поглощения фотона естественным макроскопическим окружением частицы или специальным детектором счета фотонов, а также возможностью регистрации «нулевого измерения неизменившегося состояния поля облучения». При этом возбуждение частицы описывается как результат редукции («коллапса») ее суперпозиционного состояния, при которой частица «скачком», в момент времени  $t$  переходит из начального состояния 1 в состояние возбуждения 2 при поглощении фотона облучения и регистрации состояния поля, соответствующего отсутствию одного из фотонов облучения. По [18] – это суперпозиционное состояние частицы следует считать реально существующим в этот момент времени и такой скачок предложено называть «скачок по Гейзенбергу». Полученное же на основе формализма ОУБ выражение  $\rho_{22}(t)$  описывает вероятность найти частицу в возбужденном состоянии в момент времени  $t$  при том, что она – безотносительно к регистрации состояния поля – скачком пе-

решла в это состояние в какой-то момент времени в интервале от включения взаимодействия частицы с облучением до рассматриваемого момента  $t$ . По [18] – это «скачок по Шредингеру». Как отмечено, например, в [9,13,14], в литературе можно встретить различные мнения относительно приведенных выше представлений о квантовых скачках при спектроскопических переходах частицы. Во всяком случае, представляется справедливым утверждение, что зависимость  $P_{02}(t)$  можно рассматривать, как описание динамики возбуждения частицы, дополненное информацией о динамике соответствующего состояния поля излучения. Так как формализм КТСС точнее отражает механизм взаимодействия света с частицей по сравнению с формализмом ОУБ, то следует считать, что такое «дополненное» описание динамики заселенности возбужденного состояния частицы при регистрации состояния поля излучения, соответствующего отсутствию одного из фотонов облучения, является более полным и более последовательным описанием динамики возбуждения частицы, чем то, которое дает зависимость  $\rho_{22}(t)$ .

Поэтому, как уже отмечено и во Введении, представляет интерес сравнить полученную зависимость  $P_{02}(t)$  с зависимостью  $\rho_{22}(t)$ .

Как отмечено выше, в работе [8] приведены выражения  $\rho_{mn}(t)$ , являющиеся решением этой системы ОУБ, полученные при использовании формализма теоремы Флоке. Эти выражения, содержащие Бесселевы функции первого рода от параметра  $\alpha$ , довольно громоздки, и для сравнения приведенной выше функции  $P_{02}(t)$  с функцией  $\rho_{22}(t)$ , будут использованы численные решения приведенной системы ОУБ при соответствующих значениях  $\alpha$  и  $\varphi$ .

### **Сравнение динамики возбуждения частицы с динамикой соответствующего состояния составной системы**

Сравнение полученных функций  $P_{02}(t)$  с соответствующими зависимостями  $\rho_{22}(t)$ , определенными в результате численных решений системы уравнений Блоха, отражено на приводимых ниже четырех рисунках для трех случаев облучения, характеризуемых значениями  $\alpha$  и  $\varphi$ . На этих рисунках по оси абсцисс отложено «безразмерное время»  $t$  в единицах  $\tau$  ( $\tau = \Omega t$ ), а по оси ординат – значения полученных функций  $P_{02}(t)$  и определенных численным решением ОУБ зависимостей от времени  $\rho_{22}(t)$ . Приведены также функции  $I_0(t)$ , изображенные тонкими сплошными кривыми синего цвета. Функции  $P_{02}(t)$  изображены утолщенными сплошными кривыми красного цвета, а функции  $\rho_{22}(t)$  – еще более утолщенными штриховыми кривыми зеленого цвета.

Рисунок 2 иллюстрирует отличие вида полученных функций  $P_{02}(t)$  и  $\rho_{22}(t)$  для случая облучения частицы, характеризуемого значениями  $\alpha = 0.5$ ,  $\varphi = 0$ . Цифры по оси ординат означают значения вычисленной функции  $\rho_{22}(t)$  (если не оговорено – как это сделано для рис. 3 и рис. 5). Для удобства сравнения вида

рассматриваемых функций на этом рисунке значения функции  $P_{02}(t)$  откладываются в единицах  $2^{-1}\alpha^2(1+2\alpha^2)^2$ , а функции  $I_0(t) = cNL^{-3}\hbar\omega_{21}[1 - \cos(2\Omega t)]$  – в единицах  $8cNL^{-3}\hbar\omega_{21}$ .

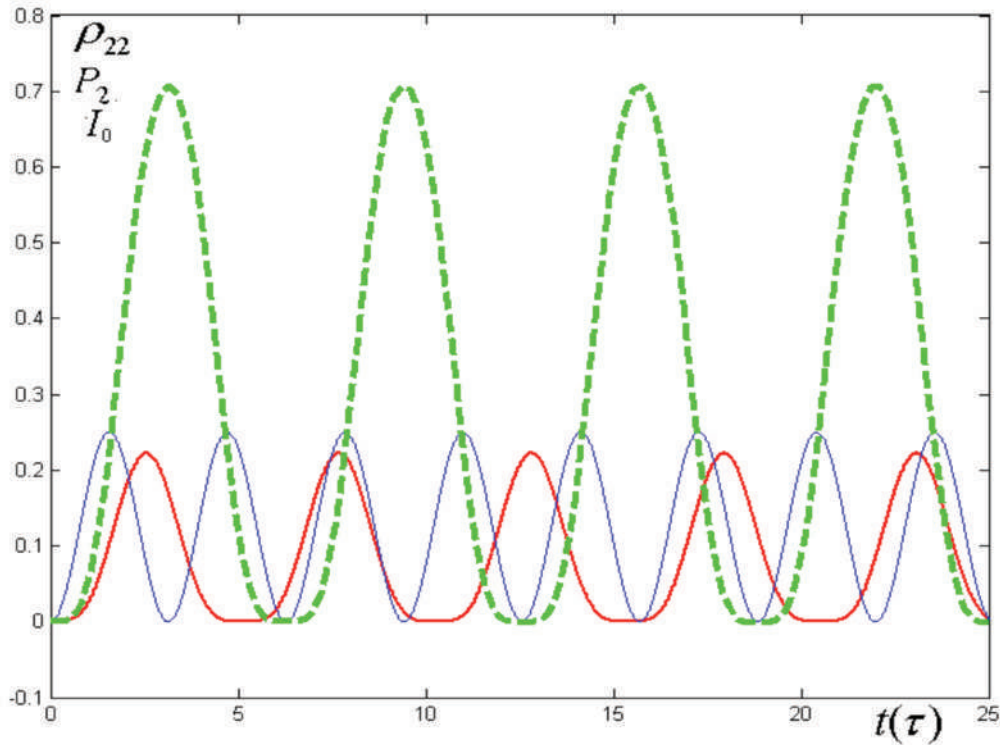


Рис. 2. Зависимости от времени  $P_{02}(t)$ ,  $\rho_{22}(t)$  и  $I_0(t)$  для случая облучения частицы, характеризуемого параметрами  $\alpha = 0.5$ ,  $\varphi = 0$  (пояснение см. в тексте).

Как видно из рис. 2, импульсы рассматриваемых функций имеют приблизительно одинаковую форму, однако появление максимумов импульсов  $P_{02}(t)$  отстает от появления максимумов  $I_0(t)$ . Еще больше отставание появления максимумов функции  $\rho_{22}(t)$ , так что, например к моменту времени  $\approx 25\tau$ , когда частица облучена 8-мью импульсами  $I_0(t)$ , заселенность возбужденного состояния частицы согласно моделированию на основе формализма КТСС проявляется 5-тью импульсами  $P_{02}(t)$ , а согласно моделированию на основе оптических уравнений Блоха – 4-мя импульсами  $\rho_{22}(t)$ .

Такого же характера отличие рассматриваемых функций иллюстрирует Рис. 3 для случая облучения частицы, характеризуемого значениями  $\alpha = 0.5$  и  $\varphi = 0.25\pi$ , и Рис. 4 для случая облучения частицы, характеризуемого значениями  $\alpha = 0.5$  и  $\varphi = 0.5\pi$ . На рисунке 3 значения функции  $\rho_{22}(t)$  отложены в единицах  $(\sqrt{2})^{-1}$ , значения функции  $P_{02}(t)$  – в единицах  $2^{-1}\alpha^2(1+2\alpha^2)^2$ , а значения функции  $I_0(t) = cNL^{-3}\hbar\omega_{21}[1 + \sin(2t)]$  – в единицах  $4cNL^{-3}\hbar\omega_{21}$ . На рисунке 4 значения функции  $P_{02}(t)$  отложены в единицах  $2\alpha^2(1+2\alpha^2)^2$ , а значения функции  $I_0(t) = cNL^{-3}\hbar\omega_{21}[1 + \cos(2\Omega t)]$  – в единицах  $8cNL^{-3}\hbar\omega_{21}$ .

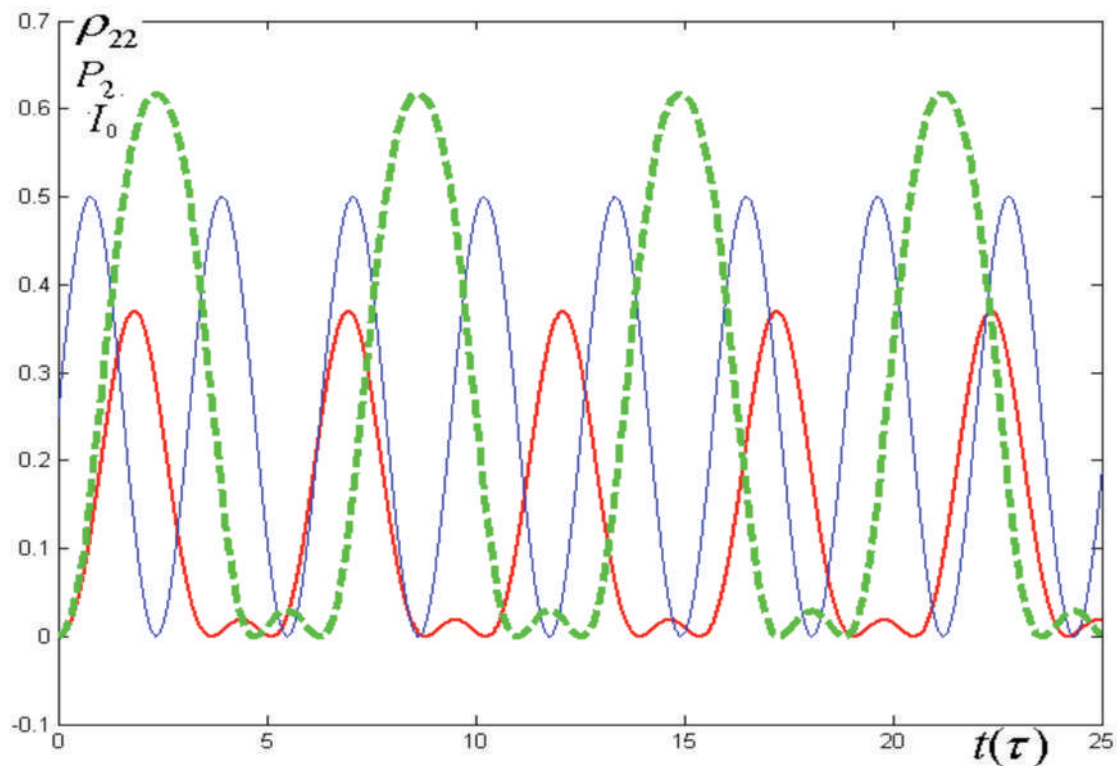


Рис. 3. Зависимости от времени  $P_{02}(t)$ ,  $\rho_{22}(t)$  и  $I_0(t)$  для случая облучения частицы, характеризуемого параметрами  $\alpha = 0.5$ ,  $\varphi = 0.25\pi$  (пояснение см. в тексте).

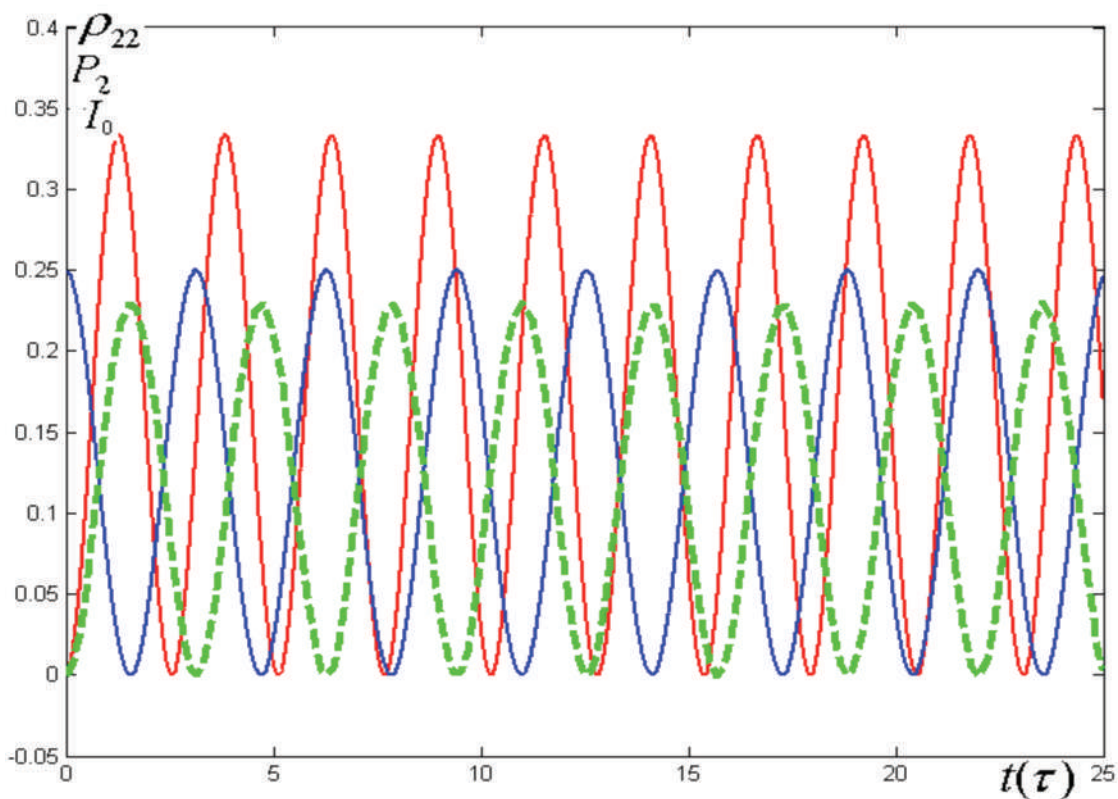


Рис. 4. Зависимости от времени  $P_{02}(t)$ ,  $\rho_{22}(t)$  и  $I_0(t)$  для случая облучения частицы, характеризуемого параметрами  $\alpha = 0.5$ ,  $\varphi = 0.5\pi$  (пояснение см. в тексте).



Отметим, что – как видно на этих рисунках – на каждые два импульса функции  $I_0(t)$  приходится один импульс функции  $\rho_{22}(t)$ , максимум которого приходится на провал до нуля значения функции  $I_0(t)$  между двумя последовательными импульсами. Такая же закономерность для относительного появления импульсов заселенности возбужденного состояния классического осциллятора, возбуждаемого классически описываемым бихроматическим полем, установлена в [19,20].

Как показали результаты дополнительных рассмотрений, отмеченное различие вида функций  $P_{02}(t)$  и  $\rho_{22}(t)$  проявляется менее заметно по сравнению с приведенными случаями, соответствующими значению  $\alpha = 0.5$ , если интенсивность облучения ( $\Omega_R$ ) меньше при тех же значениях расстройка резонанса частоты каждой из монохроматических компонент облучения  $\Omega$  (так что  $\alpha < 0.5$ ), или если значение  $\Omega$  больше при тех же значениях  $\Omega_R$ . Этого и следовало ожидать, имея в виду установленную в [13] такую же закономерность различия результатов моделирования двумя использованными методами заселенности возбужденного состояния частицы при облучении монохроматическим облучением. При облучении, характеризующимся значением  $\alpha > 0.5$ , различия вида функций  $P_{02}(t)$  и  $\rho_{22}(t)$  могут иметь совершенно другой характер, по сравнению с отмеченными выше различиями. Пример таких различий при облучении, характеризуемом значениями  $\alpha = 1$  и  $\varphi = 0.25\pi$ , иллюстрирует Рис. 5.

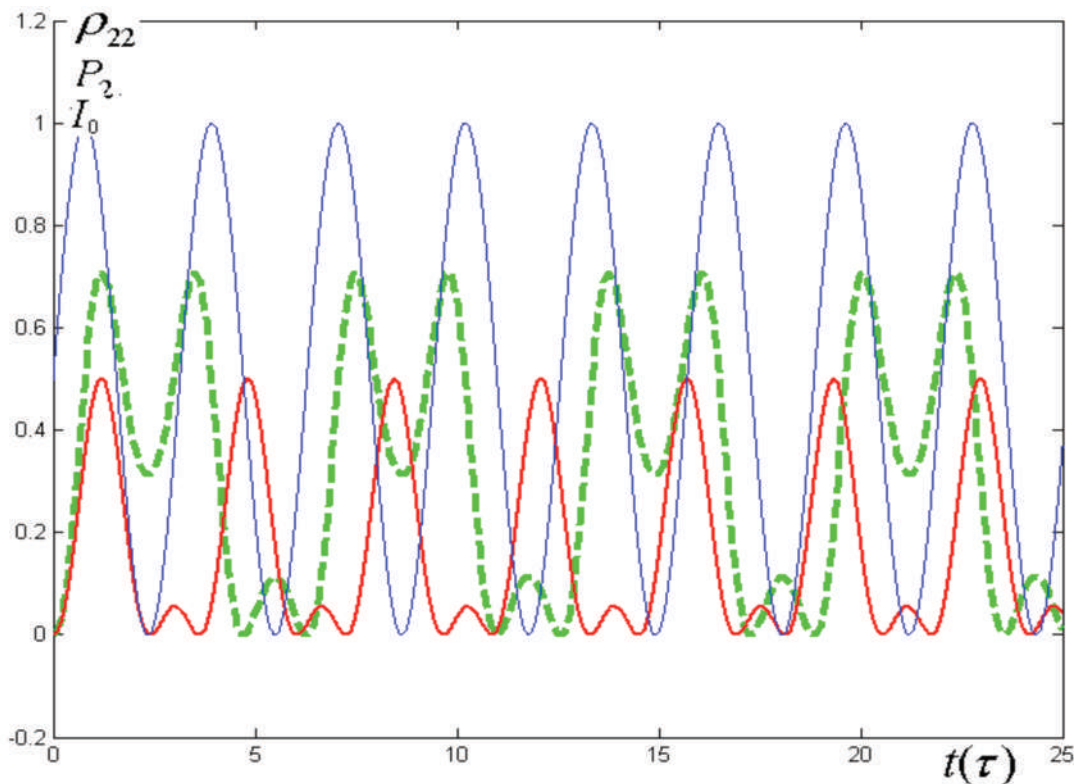


Рис. 5. Зависимости от времени  $P_{02}(t)$ ,  $\rho_{22}(t)$  и  $I_0(t)$  для случая облучения частицы, характеризуемого параметрами  $\alpha = 1$ ,  $\varphi = 0.25\pi$  (пояснение см. в тексте).



На рисунке 5 для удобства сравнения значения функции  $\rho_{22}(t)$  отложены в единицах  $(\sqrt{2})^{-1}$ , функции  $P_{02}(t)$  – в единицах  $2^{-1}\alpha^2(1+2\alpha^2)^2$ , а функции  $I_0^{K6}(t) = cNL^{-3}\hbar\omega_{21}[1 + \sin(2\Omega t)]$  – в единицах  $2cNL^{-3}\hbar\omega_{21}$ . Как видно на этом рисунке, уже в результате возбуждения первыми импульсами облучения вид функции  $P_{02}(t)$  существенно отличается от вида функции  $\rho_{22}(t)$ . Так, в течение действия первого импульса облучения обе эти функции практически в одно и то же время достигают своего максимального значения, а на спаде этого импульса облучения функция  $P_{02}(t)$  спадает до нуля, в то время как функция  $\rho_{22}(t)$  к этому моменту времени спадает примерно на половину своего максимального значения. Со временем соотношение между значениями функции в одно и то же время меняется, так что, например, в области провала до нуля функции  $I_0^{K6}(t)$  после ее 7-го импульса функция  $P_{02}(t)$  имеет слабый максимум, тогда как функция  $\rho_{22}(t)$  имеет минимум, глубина которого составляет примерно половину максимального значения, достигнутого после действия 7-го импульса.

### Заключительное замечание

Итак, установлено, что по своему характеру рассмотренная на основе формализма теории составной системы динамика возбуждения частицы значительно отличается от динамики возбуждения частицы, определенной на основе формализма оптических уравнений Блоха. Поскольку формализм теории составной системы является более полным и точным по сравнению с формализмом оптических уравнений Блоха, то есть основания рекомендовать полученные в настоящей работе выражения использовать для уточнения интерпретации механизма фотовозбуждения вещества бихроматическим полем (которая приведена в ряде работ, отмеченных во Введении), для корректного описания упомянутых во Введении эффектов преобразования веществом бихроматического поля и для изучения возможности совершенствования методов оптимального квантового управления ходом фотопревращений молекул выбором разности начальных фаз монохроматических компонент бихроматического облучения.

### Литература

1. Shore B.W. Coherent manipulations of atoms using laser light. // Acta physica Slovaca. 2008. **58**(3). 243–486.
2. Ehlitzky F. Atomic phenomena in bichromatic laser fields // Physics Reports 2001. **345**. 175–264.
3. Скалли М.О., Зубайри М.С. Квантовая оптика. // М.: ФИЗМАТЛИТ 2003. 504 с.
4. Астапенко Валерий. Взаимодействие вещества с бихроматическим электромагнитным полем. // LAP LAMBERT Academic Publishing RU. Saarbrucken. 2012. 225с.

5. *Guccione-Gush R., Gush H. P.* Two-level system in a bichromatic field. // *Phys. Rev. A.* 1974. **10**. 1474–1487.
6. *Гореславский С.И., Крайнов В.П.* Двухуровневый атом в резонансном бихроматическом поле. // *ЖЭТФ.* 1979. **76**. 26–33.
7. *Goreslavsky S. P., Delone N. B., Krainov V. P.* The dynamics and spontaneous radiation of a two-level atom in a bichromatic field. // *J. Phys. B: Atom. Molec. Phys.* 1980. **13**. 2659–2669.
8. *Feneuille S., Schweighofer M-G., Oliver G.* Response of a two-level system to a narrow-band light excitation completely modulated in amplitude. // *J. Phys. B: Atom. Molec. Phys.* 1976. **9**. 2003–2009.
9. *Менский М.Б.* Диссипация и декогеренция квантовых систем. // *Успехи физ. наук.* 2003. **173**(11). 1199–1219.
10. *Silverans R.E., Borghs G., De Bisshop P., Van Hove M.* Phase Effects in Bichromatic Field. // *Phys Rev Lett* 1985. **55**(10). 1070–1073.
11. *Wu Q., Gauthier D.J., Mossberg T.W.* Phase-sensitive dynamics of bichromatically driven two-level atoms. // *Phys. Rev.* 1994. **A. 49**(3). R 1519–1522.
12. *Осадько И.С.* Флуктуирующая флуоресценция наночастиц. // М.: ФИЗМАТЛИТ 2011. 320 с.
13. Морозов В.А. Моделирование динамики заселенности состояний наночастицы. // LAP LAMBERT Academic Publishing RU. Beau Bassin. Mauritius. 2018. 132 с.
14. Лоудон Р. Квантовая теория света. // М.: «МИР» 1976. 488 с.
15. *Белинский А.В.* Квантовая неопределенность и контрпример нелокального классического «реализма». // *Опт. и спектр.* 2017. **123**(3). 393–399.
16. *Морозов В.А., Шорыгин П.П.* Резонансное преобразование двухуровневыми молекулами многофотонного бихроматического нестационарного излучения. // *Опт. и спектр.* 1987. **63**(3). 693–695.
17. *Гайтлер В.* Квантовая теория излучения. // М.: Изд-во иностр. лит. 1956. 491 с.
18. *Макомбер Дж.*, Динамика спектроскопических переходов. // М.: МИР, 1979, 347 стр.
19. *Морозов В.А., Шорыгин П.П.* Резонансное преобразование молекулами полихроматического излучения, имеющего вид периодической последовательности импульсов. Временные характеристики вторичного излучения. // *Опт. и спектр.* 1981. **51**(6). 992–1001.
20. *Морозов В.А., Шорыгин П.П., Гутон Ю.В.* Формирование импульсов вторичного излучения света молекулами (релеевское рассеяние и флуоресценция). // *Опт. и спектр.* 1985. **58**(2). 324–330.

# MATHEMATICAL MODELING OF THE POPULATION DYNAMICS OF THE STATES OF A COMPOSITE SYSTEM OF A TWO-LEVEL NANOPARTICLE AND QUANTUM BICHROMATIC ELECTROMAGNETIC FIELD

V.A. Morozov

*Institute of Organic Chemistry. N.D. Zelinsky  
Russian Academy of Sciences, Moscow*

*E-mail: morozov@mail.ioc.ac.ru*

Received 10.12.2018

Mathematical modeling of the population dynamics of the states of a composite system of a two-level particle and a quantized bichromatic electromagnetic field reversibly exchanging energy with this particle has been carried out. Expressions are obtained that describe this dynamics analytically for the case when the average frequency of the monochromatic components of the irradiation field coincides with the frequency of the particle's own transition, and the amplitudes of the electric field oscillations of these components are the same for an arbitrary difference of their initial phases. The obtained expressions differ significantly from the expressions known from the literature for the time dependence of the population of the corresponding particle states, which were obtained by various authors using various methods of the classical theory to describe a bichromatic field acting on a particle as a closed quantum system. There are also significant differences in the nature of the established excitation dynamics of the composite system from the character of the particle excitation dynamics determined by numerical solutions of the corresponding optical Bloch equations. Figures are given that illustrate these differences with examples of a number of specific cases of bichromatic irradiation with different intensities and different relative initial phases of its monochromatic components.