

Математическое моделирование спектров резонансной флуоресценции двух двухуровневых взаимодействующих наночастиц

© В.А. Морозов

Институт органической химии им. Н.Д. Зелинского РАН,
Москва, Россия

e-mail: morozov@mail.ioc.ac.ru

Поступила в редакцию 22.04.2024 г.

В окончательной редакции 29.12.2024 г.

Принята к публикации 11.02.2025 г.

Проведено математическое моделирование спектров резонансной флуоресценции связанных динамическим взаимодействием двух двухуровневых наночастиц. Рассмотрены случаи слабой и сильной накачки одной частицы длительным импульсом монохроматического света с несущей частотой, равной или близкой частоте ее собственного перехода. Выражения для контуров спектров коллективной и двух компонент селективной резонансной флуоресценции двух наночастиц получены как функции частоты регистрируемого фотона флуоресценции в результате использования решений системы уравнений Шредингера для амплитуд состояний составной системы из частиц, квантованного поля облучения и поля резонансной флуоресценции. На основе анализа графических изображений полученных функций определены характерные особенности формы и положения максимумов контуров спектров резонансной флуоресценции при различных значениях параметров строения и взаимодействия частиц и поля облучения.

Ключевые слова: моделирование, двухуровневые наночастицы, спектр резонансной флуоресценции.

DOI: 10.61011/OS.2025.02.59972.6345-24

Введение

Математическое моделирование спектра резонансной флуоресценции (РФ) облучаемых монохроматическим светом двухуровневых взаимодействующих наночастиц (моделей молекул, атомов, ионов, полупроводниковых квантовых точек) отражает зависимость особенностей ряда характеристик поля частотной фильтрации РФ от значений параметров облучения и параметров частиц. Результаты расчетов этой зависимости могут использоваться для сопоставления с соответствующими экспериментальными данными РФ с целью получения информации о взаимном расположении частиц, характере взаимодействия их между собой и с полем облучения. Сравнение результатов таких расчетов, полученных при моделировании с использованием различных вариантов механизма преобразования света частицами, позволяет делать выводы относительно подтверждения адекватности принятого моделирования.

Часто рассматривается диполь-дипольное взаимодействие неподвижных атомов, расстояние между которыми меньше длины волны облучаемого света, равной длине волны собственных переходов атомов. Ориентиром при таком моделировании обычно бывает проведенное во многих работах моделирование спектра РФ одного двухуровневого атома. Выражение для спектра РФ атома определяется на основе рассмотрения фурье-компоненты корреляционной функции поля РФ, которая выражается через установившееся решение управляющего уравнения для матрицы плотности атома (в приближении Маркова, Борна) с учетом затухания воз-

бужденного состояния атома по Линдбладу. Используется также определение спектра РФ как зависимость стационарной заселенности атома от частоты регистрируемого фотона флуоресценции. Согласно результатам этих работ, установлено, что при слабом по интенсивности облучении, контур спектра которого имеет вид практически одной линии, спектр РФ имеет вид такой же линии, а при большой интенсивности облучения, когда частота Раби осцилляции заселенности уровней атома намного больше константы скорости затухания его возбужденного состояния, спектр РФ имеет вид совокупности трех контуров („пиков“): центрального (с частотой в максимуме, равной частоте облучения) и двух „боковых“, частота максимума одного из них больше, а другого меньше частоты облучения на частоту Раби. Ширина центрального пика равна половине, а боковых — три четверти значения константы затухания. Эти заключения согласуются с данными соответствующих измерений спектра РФ одного атома, поэтому в работах по моделированию спектра РФ двух атомов используют основные положения отмеченного выше общего теоретического подхода, применяемого при моделировании спектра РФ одного атома, а соответствующий вычислительный формализм учитывает взаимодействие атомов, например диполь-дипольное. К одной из первых таких работ относится работа [1] с названием „Collective atomic effects in resonance fluorescence: Dipole-dipole interaction“.

В этой работе проведено моделирование спектра РФ составной системы из двух одинаковых двухуровневых атомов, взаимодействующих между собой и с квантован-

ным полем монохроматического облучения с частотой, равной частоте собственных переходов неподвижных атомов, расстояние между которыми не превышает длины волны облучения. Учитывалось динамическое диполь-дипольное взаимодействие атомов и следующие коллективные состояния системы: 1) состояние, в котором оба атома находятся в их основных состояниях, а поле облучения содержит определенное, достаточно большое число фотонов, 2) два состояния, в каждом из которых один из атомов находится в возбужденном состоянии, другой — в основном, а поле облучения содержит на один фотон меньше начального, и 3) состояние, в котором оба атома возбуждены, а поле облучения содержит на два фотона меньше первоначального. Определены такие уровни энергии и соответствующие собственные состояния системы, которые отражают расщепление вырожденных возбужденных уровней энергии системы вследствие диполь-дипольного взаимодействия атомов между собой и с полем облучения. Эти состояния использованы в качестве базисных при составлении управляющего уравнения для матрицы плотности системы, в котором учтено затухание возбужденных состояний атомов по Линдбладу. При решении этого уравнения использовались приближения, справедливые при том или ином относительном значении величины параметров атомов и интенсивности облучения. Выбирались различные способы решения уравнения для случаев: когда при той или иной силе взаимодействия атомов ожидалось четкое отделение боковых контуров спектра от центрального с разделением этих контуров друг от друга и когда ожидается их значительное перекрывание. Полученные стационарные решения применены при составлении выражения для среднего по времени значения корреляционной функции дипольного оператора атомов, использованного при определении выражения для корреляционной функции первого порядка поля в волновой зоне. Выражение для спектра РФ получено фурье-преобразованием этой корреляционной функции. В результате анализа полученного выражения сделан вывод, что при различных значениях параметров атомов, их взаимодействия и интенсивности облучения спектр РФ выглядит (в общем случае) как две группы контуров, которые симметрично смещены по обе стороны относительно центрального контура, частота максимума которого равна частоте облучения атомов. Смещение максимумов боковых контуров больше частоты Раби переходов в атомах и тем больше, чем больше энергия диполь-дипольным взаимодействием атомов. При рассмотрении случая облучения светом такой интенсивности, что частота Раби равна 14 в единицах константы скорости спонтанного излучения каждого атома, на рис. 2 в [1] приведены изображения примеров спектра при 11 разных значениях параметра, характеризующего величину энергии диполь-дипольного взаимодействия атомов. В аннотации к этой работе отмечено, что предсказываемое проведенным моделированием значительное отличие спектра РФ двух атомов

от спектра РФ одного атома, не согласуется с выводами выполненной ранее работы (дана ссылка в списке литературы), использовавшей такой же общий подход к моделированию спектра РФ двух атомов, но без учета их диполь-дипольного взаимодействия.

За последующие годы в ряде работ разных авторов моделирование спектра однофотонной коллективной РФ двух двухуровневых взаимодействующих атомов, резонансно облучаемых монохроматическим светом, проводилось при классическом описании облучения и учете как когерентной, так и некогерентной частей диполь-дипольного взаимодействия между неподвижными атомами, расстояние между которыми не больше длины волны поля облучения. Выражение для спектра и вычислительный формализм выбирались, ориентируясь на соответствующие описания моделирования спектра РФ одного атома. В одной из последних таких работ приведено изображение спектра РФ (рис. 1, *b* в [2]) для случая облучения, когда частота Раби в 30 раз превышает константу скорости затухания возбужденных состояний атомов, при выбранном характерном значении энергии диполь-дипольного взаимодействия атомов. Этот спектр выглядит как центральный контур с максимумом при частоте облучения и по три боковых контура, симметрично расположенных по обе стороны от центрального. Два контура из этих боковых расположены в области частоты, смещенной от частоты облучения на частоту Раби, а третий боковой контур — на удвоенную частоту Раби. Все контуры в области их максимумов выглядят как „пики“, но перекрываются друг с другом на уровне примерно половины их высоты. Высота максимума центрального пика несколько превышает примерно одинаковую высоту пиков в области, смещенной на частоту Раби, а высота максимума этих пиков значительно превышает высоту пика, смещенного на удвоенную частоту Раби.

Отличающийся от использованного в [1,2] теоретический подход к моделированию спектра коллективной РФ двух атомов применен в работе [3]. В этой работе рассмотрена РФ составной системы из облучаемых классически описываемым монохроматическим светом атомов и поля фотона РФ. Среди коллективных состояний этой составной системы выделялось 1) состояние, в котором поле содержит фотон РФ, а оба атома находятся в их основных состояниях, 2) два состояния, в каждом из которых один из атомов находится в возбужденном состоянии, другой — в основном, а поле содержит фотон РФ, 3) состояние, в котором оба атома возбуждены, а поле содержит фотон РФ. Используя эти состояния в качестве базисных, составлено управляющее уравнение для элементов матрицы плотности такой составной системы. Радиационное затухание возбужденных состояний атомов вводилось в результате редуцирования матрицы плотности системы по состояниям нулевого поля фотонов при учете рассматриваемого некогерентного диполь-дипольного взаимодействия атомов. При

использовании вычислительного формализма, аналогичного формализму, применявшемуся ранее в ряде работ при таком подходе к моделированию спектра РФ одного атома, получены стационарные решения управляющего уравнения для матрицы плотности системы. При этом учитывалось, что использовался ряд приближений, справедливых при выбранных относительных значениях величин параметров атомов и их положения относительно направления и поляризации облучения. Например, принято пренебрежение влиянием недиагональных элементов матрицы плотности на диагональные и исключено заселение коллективного уровня состояния, при котором возбуждены оба атома. Выражение для спектра определялось как зависимость от частоты фотона РФ суммы стационарных заселенностей трех первых из отмеченных выше коллективных состояний системы. Определенное таким образом выражение для спектра РФ записано в аналитическом виде. Оно получено при выполнении следующих условий: 1) точный резонанс с собственными переходами одинаковых атомов, 2) пренебрежение сдвигами уровней атомов за счет их диполь-дипольного взаимодействия, 3) частота Раби намного превышает константу радиационного затухания возбужденного состояния каждого атома. Вид полученной функции частоты фотона РФ изображен на рисунке (рис. 1 в [3]), который иллюстрирует заключительное замечание авторов о том, что спектр содержит широкие боковые полосы, симметрично расположенные относительно центральной полосы со сдвигом на частоту Раби и дополнительную, более широкую полосу с небольшим максимумом, сдвинутую примерно на удвоенную частоту Раби. В заключительной части этой работы отмечено, что такое предсказание относительно формы контура РФ не согласуется со сделанными в ряде разных работ предсказаниями формы РФ при тех же значениях параметров атомов и облучения, которые получены при применении несколько иных общих подходов (приведены ссылки на 5 таких работ).

К отмеченным в [1–3] различиям вида спектров РФ, полученных в этих и других работах, добавим примеры различия выводов об общих характеристиках полученных спектров РФ, которые приведены в разных работах. Это относится, например, к следующим выводам: 1) отличие спектра РФ двух атомов от спектра РФ одного атома при слабом по интенсивности облучении проявляется сильнее по сравнению с отличием при сильном облучении, 2) о несимметричном сдвиге боковых контуров относительно центрального, 3) о происхождении боковых контуров, которые сдвинуты по обе стороны от центрального на удвоенную частоту Раби. В отсутствие сравнения полученных спектров с соответствующими экспериментальными данными, которое позволило бы внести ясность в происхождение этих несогласованностей, можно предположить, что эти различия обусловлены отличием тех подходов и (или) вычислительного формализма, которые применены в отмеченных работах.

Имея в виду отмеченное разногласие, представляет интерес иметь результаты моделирования спектра РФ двух атомов, которое выполнено при применении теоретического подхода к рассмотрению РФ двух атомов, отличающегося от подходов, использованных в [1–3]. В качестве такого подхода можно принять подход, использованный при моделировании спектра возбуждения РФ двух атомов в работе [4] и динамики заселенности и когерентности состояний двух атомов при РФ в работе [5].

Моделирование спектра РФ двух атомов при применении теоретического подхода к рассмотрению РФ, который использован в работах [4,5], поставлено целью настоящей работы. Среди основных отличий такого моделирования от применявшегося в рассмотренных выше работах, отметим следующие: 1) использование квантового рассмотрения состояний как поля облучения, так и рассеянного поля, 2) составление выражения для спектра РФ как зависимости отдельно рассматриваемой заселенности основного состояния каждого из атомов от частоты регистрируемого фотона РФ с отнесением его к излучению тем или иным атомом („селективная РФ“), 3) определение этих заселенностей в результате строгого решения системы уравнений Шредингера для амплитуд рассматриваемых состояний составной системы из атомов и поля излучения, 4) рассмотрение РФ атомов с различной частотой их собственных переходов как при строгом резонансом, так и квазирезонансом облучения.

В последующих частях настоящей работы приведено подробное описание всех деталей выполнения принятого моделирования при применении вычислительного формализма работ [4,5], применяя при этом используемые в [4,5] такие термины как „наночастица“ (или просто частица) и „спектр РФ“. Приведены графические изображения полученных функций частоты фотона РФ, которые иллюстрируют примеры зависимости характерных особенностей формы и положения максимумов контуров спектров коллективной и селективной РФ от значений параметров строения и взаимодействия частиц и поля резонансного и квазирезонансного облучения.

Модель полной составной системы

Гамильтониан полной составной системы из двух „точечных“ неподвижных двухуровневых частиц (частица A и частица B с неперекрывающимися их волновыми функциями), которые взаимодействуют между собой и с квантованным полем излучения, запишем в виде

$$H = H_f + W + \sum_{j=A,B} (H_j + V_j),$$

где H_f — гамильтониан поля излучения, W — оператор энергии динамического взаимодействия между частицами, $H_A(H_B)$ — гамильтониан частицы $A(B)$, $V_A = -(\mathbf{ed}_A$ — оператор энергии электродипольного

($\mathbf{d}_A$ — оператор дипольного момента частицы A) взаимодействия частицы A с поперечными компонентами поля излучения и аналогичное выражение $V_B = -(\mathbf{e}\mathbf{d}_B)$ для частицы B . Ориентация диполей переходов частиц и направление облучения может быть такой, что оно возбуждает только частицу A . Расстояние между частицами может быть меньше или порядка длины волны спонтанной флуоресценции изолированной частицы и изолированной частицы B .

Под оператором W , приводящим к обратимым переходам между частицами в возбужденных состояниях, будем полагать оператор энергии диполь-дипольного взаимодействия частиц, например принятого при описании в [1] взаимодействия частиц, расположенных на расстоянии порядка длины волны их собственных переходов, или принятого при описании взаимодействия близко отстоящих друг от друга частиц, как двух щелочно-земельных атомов, биение интенсивности флуоресценции которых изучалось в [6], или пары квантовых точек CdSe/ZnS, геометрия относительного положения которых определялась по результатам изучения их РФ в [7].

Собственные состояния частицы A с энергиями E_1 и E_4 обозначим $|1\rangle$ и $|4\rangle$, а собственные состояния частицы B с энергиями E_2 и E_3 обозначим $|2\rangle$ и $|3\rangle$. Для определенности рассмотрим пару частиц с $E_4 \geq E_3$, $E_3 \geq E_2$, $E_2 = E_1$ и используем обозначения $\hbar\omega_{nm} = (E_n - E_m)$, где $n, m = 4 - 1$, $n > m$, $\omega_{41} - \omega_{32} \equiv 2\Delta$, $0 \leq \Delta \ll \omega_{41}, \omega_{32}$.

Начальное поле облучения содержит целое число ($N > 1$) фотонов λ с частотой ω_L такой, что $|\omega_L - \omega_{41}| \ll \omega_{41}$; λ — совокупность индексов, характеризующих волновой вектор фотона и состояние его поляризации. Состояние поля, содержащего N фотонов λ , обозначим $|\lambda\rangle$, а содержащего $N - 1$ фотонов λ обозначим $|0\rangle$.

Обозначим $|12\mu\rangle$ такое состояние полной составной системы, когда поле излучения содержит $N - 1$ фотонов λ и один фотон μ ($\mu \neq \lambda$) РФ, а пара частиц находится в их „коллективном“ основном состоянии $|12\rangle$. Для краткости записи здесь и далее, где это не приводит к недоразумению, в обозначении $|12\mu\rangle$ опущен индекс „0“.

Полагая, что частицы и рассматриваемое поле излучения находятся в пространстве объема L^3 , обозначим матричный элемент оператора V_A по состояниям полной составной системы $|12\lambda\rangle$ и $|420\rangle$ как

$$\langle 12\lambda | V_A | 420 \rangle = iL^{-3/2} \sqrt{2\pi N \hbar \omega_L} (d_\lambda)_{14} \equiv V_{12\lambda}^{420} \equiv i\hbar\Omega,$$

где $(d_\lambda)_{14}$ — матричный элемент по состояниям $|1\rangle$ и $|4\rangle$ (который полагается реальной величиной) проекции оператора d на направление поляризации фотона λ , Ω — „частота Раби“. Для матричного элемента V_A по состояниям $|12\mu\rangle$ и $|420\rangle$ используем обозначение

$$\langle 12\mu | V_A | 420 \rangle = iL^{-3/2} \sqrt{2\pi \hbar \omega_\mu} (d_\mu)_{14} \equiv V_{12\mu}^{420},$$

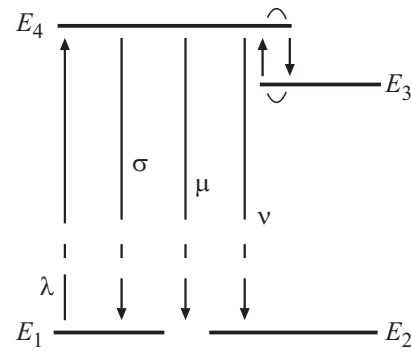


Рис. 1. Схема относительного положения уровней энергии частиц с указанием переходов при изменении соответствующих состояний.

где $(d_\mu)_{14}$ — матричный элемент оператора V_A по состояниям $|1\rangle$ и $|4\rangle$ проекции оператора d на направление поляризации фотона μ , ω_μ — частота фотона μ . Для матричного элемента V_B по состояниям $|12\mu\rangle$ и $|130\rangle$ используем обозначение

$$\langle 12\mu | V_B | 130 \rangle = iL^{-3/2} \sqrt{2\pi \hbar \omega_\mu} (d_\mu)_{23} \equiv V_{12\mu}^{130},$$

где $(d_\mu)_{23}$ — матричный элемент проекции оператора D на направление поляризации фотона μ по состояниям $|2\rangle$ и $|3\rangle$. Для краткости записи $V_{12\lambda}^{420}$ будем записывать как $V_{1\lambda}^{40}$, $V_{12\mu}^{420}$ — как $V_{1\mu}^{40}$ и $V_{12\mu}^{130}$ как $V_{2\mu}^{30}$.

Так же как в [4,5], будет использоваться гильбертово пространство состояний $|0\sigma\rangle$ отмеченного поля $|0\rangle$ и поля фотона σ , излучаемого при РФ частицей A , взаимодействующей с частицей B , и состояний $|0\nu\rangle$ поля $|0\rangle$ и поля фотона ν , излучаемого при рассматриваемой РФ частицей B . В обозначении этих состояний, так же как в обозначении состояний $|\mu\rangle$, будем опускать индекс „0“. Соответствующие матричные элементы имеют следующий вид:

$$\langle 12\sigma | V_A | 420 \rangle = iL^{-3/2} \sqrt{2\pi \cdot \hbar \omega_\sigma} \cdot (d_\sigma)_{14} \equiv V_{1\sigma}^{40},$$

$$V_{2\nu}^{30} = \langle 12\nu | V_B | 130 \rangle = iL^{-3/2} \sqrt{2\pi \cdot \hbar \omega_\nu} \cdot (d_\nu)_{23} \equiv V_{2\nu}^{30}.$$

Матричные элементы оператора W между состояниями $|420\rangle$ и $|130\rangle$ будем обозначать как $\langle 42 | W | 13 \rangle = \langle 13 | W | 42 \rangle \equiv \hbar w$.

На рис. 1 схематически приведено относительное положение отмеченных отрезками горизонтальных линий уровней энергии $E_1 \div E_4$ рассматриваемой пары частиц. Круговыми кривыми обозначены нерadiационные, обратимые переходы между частицами в возбужденных состояниях, обусловленные действием оператора W . Вертикальными линиями со стрелками отображены радиационные переходы в полной составной системе, которые сопровождаются изменением состояния поля облучения и поля коллективной или селективной резонансной флуоресценции.

Система уравнений и ее решения

Моделирование динамики заселенности состояний полной составной системы будем рассматривать на основе использования решений системы уравнений Шредингера для амплитуд $b_k(t)$ заселенности собственных состояний принятого гамильтониана. В принятом резонансном приближении эта система имеет следующий вид:

$$i\hbar\dot{b}_k(t) = \sum_l \langle k|(V_A + V_B + W)l\rangle b_l(t) \times \exp[i(E_k - E_l)t/\hbar] + i\hbar\delta_{ki}\delta(t),$$

где i, k, l — индексы базисных ортонормированных состояний полной составной системы: i — начального состояния $|12\lambda\rangle$, k и l — состояний $|420\rangle$, $|130\rangle$, $|12\mu\rangle$; энергия этих состояний обозначена как E_i, E_k, E_l ; $\delta(t)$ — функция Дирака, δ_{ki} — символ Кронекера, $\delta_{ki} = 0$ при $k \neq i$ и $\delta_{ki} = 1$ при $k = i$. Время отсчитывается от момента $t = 0$. Относительно роли неоднородного члена $i\hbar\delta_{ki}\delta(t)$ и сохранения нормировки $\sum_k |b_k(t)|^2 = 1$ — см., например, § 16 гл. 4 в [8].

Система уравнений для амплитуд базисных состояний $|12\lambda\rangle$, $|420\rangle$, $|130\rangle$, $|12\mu\rangle$ при начальном условии $b_{12\lambda}(+0) = 1$ имеет следующий вид:

$$\begin{aligned} i\hbar\dot{b}_{12\lambda} &= V_{1\lambda}^{40} b_{420}(t) \exp[i(E_{420} - E_{12\lambda})t/\hbar] + i\hbar\delta(t), \\ i\hbar\dot{b}_{420}(t) &= V_{40}^{1\lambda} b_{12\lambda} \exp[i(E_{12\lambda} - E_{420})t/\hbar] \\ &+ \sum_{\mu \neq \lambda} V_{40}^{1\mu} b_{12\mu}(t) \exp[i(E_{420} - E_{12\mu})t/\hbar] \\ &+ W_{42}^{13} b_{130}(t) \exp[i(E_{420} - E_{130})t/\hbar] \\ i\hbar\dot{b}_{130}(t) &= \sum_{\mu \neq \lambda} V_{30}^{2\mu} b_{12\mu}(t) \exp[i(E_{130\lambda} - E_{12\mu})t/\hbar] \\ &+ W_{13}^{42} b_{420}(t) \exp[i(E_{130} - E_{420})t/\hbar], \\ i\hbar\dot{b}_{12\mu}(t) &= V_{1\mu}^{40} b_{420}(t) \exp[i(E_{12\mu} - E_{420})t/\hbar] \\ &+ V_{2\mu}^{30} b_{130}(t) \exp[i(E_{12\mu} - E_{130})t/\hbar]. \end{aligned}$$

При принятом базисе описания состояний полной составной системы приведенная система уравнений отражает учет возбуждения облучением только частицы А. Такое возбуждение может быть реализовано определенным выбором соответствующей конфигурации взаимного расположения частиц, направления распространения и поляризации фотонов λ или выбором частоты ω_L , если частицы таковы, что $\Delta \gg \gamma_4$. Отметим также, что эта система уравнений описывает динамику амплитуд вероятности приведенных базисных состояний полной составной системы при преобразовании одного из фотонов облучения в соответствующий фотон РФ, не принимая во внимание различных других состояний частиц

и поля излучения и соответственно других процессов излучения фотона РФ. Например, таких процессов, по поводу которых на стр. 249, гл. 10 в [9] приведено такое замечание: „атом может когерентно взаимодействовать с полем много раз до того, как спонтанно излучит фотон“.

При использовании фурье-представлений амплитуд $b_k(t)$ и $\delta(t)$ -функции,

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

и

$$i\hbar\delta(t) = i(2\pi)^{-1} \int_{-\infty}^{+\infty} \exp[i(E_i - E)t/\hbar] dE,$$

матрица $G_{ki}(E)$ определяется решением системы уравнений

$$(E - E_k)G_{ki}(E) = \sum_l (V_A + V_B + W)_{kl} G_{li}(E) + \delta_{ki}.$$

Переходя к решению этой системы уравнений, используем следующие выражения:

$$i\hbar\gamma_4(E) = - \sum_{\mu} |V_{1\mu}^{40}|^2 \zeta(E - E_{12\mu}),$$

$$\hbar\gamma_3(E) = - \sum_{\mu} |V_{2\mu}^{30}|^2 \zeta(E - E_{12\mu}),$$

$$\hbar\tilde{\gamma}(E) = - \sum_{\mu} V_{1\mu}^{40} V_{30}^{2\mu} \zeta(E - E_{12\mu}),$$

где $\zeta(E) = P/E - i\pi\delta(E)$, P/E — главное значение функции $1/E$. Оставляя в этих суммах только слагаемые, пропорциональные $\delta(E)$, после выполнения указанного суммирования (см. [8]) под полученными выражениями будем подразумевать константы $\gamma_4 = 2\omega_{41}^3 d_{41}^2 / 3\hbar c^3$, $\gamma_3 = 2\omega_{32}^3 d_{32}^2 / 3\hbar c^3$, $\tilde{\gamma} = 2\omega_{41}^3 d_{41} d_{32} / 3\hbar c^3$, которые характеризуют соответственно скорость спонтанного радиационного распада состояния $|4\rangle$ изолированной частицы А, скорость спонтанного радиационного распада состояния $|3\rangle$ изолированной частицы В и скорость „совместного“ спонтанного радиационного распада этих состояний. Такое использование приведенных выше выражений при описании РФ двух взаимодействующих частиц с принятым условием $0 \leq \Delta \ll \omega_{41}, \omega_{32}$ представляется в той же мере обоснованным, как аналогичное использование константы $\gamma_4 = 2\omega_{41}^3 d_{41}^2 / 3\hbar c^3$ вместо выражения

$$i\hbar\gamma_4(E) = - \sum_{\mu} |V_{1\mu}^{40}|^2 \zeta(E - E_{12\mu}),$$

которое принято при описании РФ, соответствующей одной изолированной двухуровневой частицы в [8] — см. замечания на стр. 230 и текст сноски на стр. 231.

С использованием введенных обозначений систему уравнений для $G_{ki}(E)$ запишем (опуская указание на зависимость G_{ki} от E) в виде

$$\begin{aligned}(E - E_{12\lambda})G_{12\lambda} &= V_{1\lambda}^{40}G_{420} + 1, \\ (E - E_{420} + i\gamma_4)G_{420} &= V_{40}^{1\lambda}G_{12\lambda} + \hbar(w - i\tilde{\gamma})G_{130}, \\ (E - E_{130} + i\gamma_3)G_{130} &= \hbar(w - i\tilde{\gamma})G_{420}, \\ (E - E_{12\mu})G_{12\mu}V_{1\mu}^{40}G_{420} &+ V_{2\mu}^{30}G_{130}.\end{aligned}$$

Решая эту систему уравнений, находим

$$G_{12\mu}(E) = [V_{1\mu}^{40}V_{40}^{1\lambda}E_I + V_{2\mu}^{30}V_{40}^{1\lambda}\hbar(w - i\tilde{\gamma})] \times \zeta(E - E_{12\mu}/F(E)),$$

где

$$\begin{aligned}F(E) &= E_0 [E_I E_{II} - \hbar^2(w^2 - \tilde{\gamma}^2) + 2i\hbar w\tilde{\gamma}] - \hbar^2\Omega^2 E_I, \\ E_0 &= E - E_{12\lambda}, \\ E_I &= E - E_{130} + i\hbar\gamma_3, \\ E_{II} &= E - E_{420} + i\hbar\gamma_4.\end{aligned}$$

Используя это выражение для $G_{12\mu}(E)$ и соотношения

$$\begin{aligned}\lim_{t \rightarrow \infty} \zeta(E - E_{12\mu}) \exp[i(E_{12\mu} - E)t/\hbar] &= -2\pi i \delta(E - E_{12\mu}), \\ \int_{-\infty}^{\infty} f(E) \delta(E - E_{12\mu}) dE &= f(E_{12\mu}),\end{aligned}$$

для $t \gg 1/\gamma_4$ получаем

$$\begin{aligned}b_{12\mu}(\bar{\omega}_\mu, t = \infty) &= i(2\pi)^{-1} \lim_{t \rightarrow \infty} \int_{-\infty}^{\infty} G_{12\mu}(E) \\ &\times \exp[i(E_{12\mu} - E)t/\hbar] dE = -i\hbar^{-1}\Omega \\ &\times [V_{1\mu}^{40}(\bar{\omega}_\mu + 2\Delta + i\gamma_3) + V_{2\mu}^{30}(w - i\tilde{\gamma})] / F_\mu(\bar{\omega}_\mu),\end{aligned}$$

где $\bar{\omega}_\mu \equiv \omega_\mu - \omega_{41}$, $\bar{\omega}_L \equiv \omega_L - \omega_4$,

$$\begin{aligned}F_\mu(\bar{\omega}_\mu) &= (\bar{\omega}_\mu - \bar{\omega}_L) [(\bar{\omega}_\mu + 2\Delta + i\gamma_3)(\bar{\omega}_\mu + i\gamma_4) \\ &- w^2 + \tilde{\gamma}^2 + 2i w \tilde{\gamma}] - \Omega^2(\bar{\omega}_\mu + 2\Delta + i\gamma_3).\end{aligned}$$

Заметим, что если $w = \gamma_3 = \Delta = \tilde{\gamma} = 0$, то $b_{12\mu}(\bar{\omega}_\mu, t = \infty)$ имеет вид выражения для амплитуды состояния РФ одной изолированной частицы А:

$$\begin{aligned}b_A^{RF}(\bar{\omega}_\mu, t = \infty) &= \frac{V_{1\mu}^{40}V_{40}^{1\lambda}}{\hbar^2(\bar{\omega}_\mu - \bar{\omega}_L)(\bar{\omega}_\mu + i\gamma_4) - |V_{1\lambda}^{40}|^2} \\ &= \frac{V_{1\mu}^{40}V_{40}^{1\lambda}}{\hbar^2(\bar{\omega}_\mu + i\gamma_4)[\bar{\omega}_\mu - \bar{\omega}_L + i\Gamma_\mu(\bar{\omega}_\mu)]},\end{aligned}$$

где $\Gamma_\mu(\bar{\omega}_\mu) = i|V_{1\lambda}^{40}|^2/(\bar{\omega}_\mu + i\gamma_4)$.

Функция $b_A^{RF}(\bar{\omega}_\mu, t = \infty)$ имеет вид приведенного на стр. 231 в [8] выражения (20.10) после подстановки в него выражений (20.6) и (20.7), приведенных на стр. 230.

Амплитуда $b_{12\mu}(\bar{\omega}_\mu, t = \infty)$ представляет собой сумму слагаемых, отображая „интерферирующие альтернативы“ (см. стр. 25, 26 в [10]) вероятности излучения фотона коллективной РФ по „каналу излучения $|4\rangle \rightarrow |1\rangle$ “ частицей А и „каналу излучения $|3\rangle \rightarrow |2\rangle$ “ частицей В с заселением коллективного основного состояния частиц. На практике детектирование состояния поля РФ может быть таким (см. замечание на стр. 468 в [9], пункт 21.1.3 гл. 21), что оно „воспринимает лишь излучение на переходе $|4\rangle \rightarrow |1\rangle$ и игнорирует излучение на переходе $|3\rangle \rightarrow |2\rangle$, или наоборот, воспринимает излучение на переходе $|3\rangle \rightarrow |2\rangle$ и игнорирует излучение на переходе $|4\rangle \rightarrow |1\rangle$, осуществляя выбор того или иного „пути излучения“ фотона РФ той или иной частицей с заселением ее основного состояния. При таком детектировании „мы знаем (или можем узнать)“, какая из частиц излучила фотон РФ, и представляется естественным полагать, что при моделировании характеристик этой селективной РФ вместо амплитуды $b_{12\mu}(\bar{\omega}_\mu, t)$ следует раздельно использовать две такие амплитуды: $b_{12\sigma}(\bar{\omega}_\sigma, t)$ и $b_{12\nu}(\bar{\omega}_\nu, t)$, которые отражают эволюцию каждого из отмеченных выше состояний $|12\sigma\rangle$, $|12\nu\rangle$ и при $t = \infty$ имеют следующий вид:

$$b_{12\sigma}(\bar{\omega}_\sigma, t = \infty) = -i\hbar^{-1}\Omega [V_{1\sigma}^{40}(\bar{\omega}_\sigma + 2\Delta + i\gamma_3)] / F_\sigma(\bar{\omega}_\sigma),$$

$$b_{12\nu}(\bar{\omega}_\nu, t = \infty) = -i\hbar^{-1}\Omega V_{2\nu}^{30}w / F_\nu(\bar{\omega}_\nu),$$

где $\bar{\omega}_\sigma \equiv \omega_\sigma - \omega_{41}$, $\bar{\omega}_\nu \equiv \omega_\nu - \omega_{41}$; функция $F_\sigma(\bar{\omega}_\sigma)$ имеет вид функции $F_\mu(\bar{\omega}_\mu)$, в которой $\tilde{\gamma} = 0$ и частота $\bar{\omega}_\mu$ заменена на $\bar{\omega}_\sigma$, а функция $F_\nu(\bar{\omega}_\nu)$ имеет вид функции $F_\sigma(\bar{\omega}_\sigma)$ при замене $\bar{\omega}_\sigma$ на $\bar{\omega}_\nu$.

Приведенные выражения $b_{12\sigma}(\bar{\omega}_\sigma, t = \infty)$ и $b_{12\nu}(\bar{\omega}_\nu, t = \infty)$ получены в [5] как решения соответствующей системы уравнений для амплитуд базисных состояний $|12\lambda\rangle$, $|420\rangle$, $|130\rangle$, $|12\sigma\rangle$ и $|12\nu\rangle$. Квадраты модулей приведенных выше решений определяют „неинтерферирующие альтернативы“ вероятности (см. стр. 25, 26 в [10]) детектирования фотона РФ, излученного частицей А или частицей В с информацией относительно определенного значения вероятности заселения основного состояния каждой из частиц как части вероятности заселения их коллективного основного состояния при детектировании фотона коллективной РФ (см. замечание по этому поводу во Введении работы [11]). Отметим, что селективная РФ сопутствует, например, бимолекулярной вторичной фотореакции, так как мы „можем узнать“, какая из молекул реакционного центра излучила фотон РФ: молекула реагента или отличающаяся от нее по химическим свойствам молекула продукта реакции. Для случая облучения молекулы реагента коротким импульсом, приводящим к спонтанной флуоресценции пары молекул реакционного центра, моделировании динамики состояний полной составной

системы проведено в [12] на основе полученных в аналитической форме решений $b_{12\sigma}(t)$ и $b_{12\nu}(t)$ соответствующей системы уравнений при начальном условии $b_{420}(t=0) = 1$.

Контуры спектров

Спектром РФ будем называть безразмерные функции частоты фотона РФ, образованные квадратом модуля соответствующей амплитуды установившегося состояния полной составной системы. Спектр РФ одной изолированной частицы обозначим $S_A^{RF}(\bar{\omega}_\mu)$, спектр коллективной РФ пары частиц обозначим $S_\mu(\bar{\omega}_\mu)$, спектр компоненты селективной РФ частицы A обозначим $S_\sigma(\bar{\omega}_\sigma)$, спектр компоненты селективной РФ частицы B обозначим $S_\nu(\bar{\omega}_\nu)$. Частота измеряется в единицах γ_4 .

Используя приведенное выше выражение $b_A^{RF}(\bar{\omega}_\mu, t = \infty)$, при замене функции $\Gamma_\mu(\bar{\omega}_\mu)$ ее действительной частью (как в [8] стр. 230-231) получаем

$$\begin{aligned} S_A^{RF}(\bar{\omega}_\mu) &= |b_A^{RF}(\bar{\omega}_\mu, t = \infty)|^2 \\ &= \hbar^{-4} |V_{1\mu}^{40}|^2 |V_{40}^{11}|^2 / [(\bar{\omega}_\mu^2 + \gamma_4^2) [(\bar{\omega}_\mu - \bar{\omega}_L)^2 + \Gamma_\mu^2(\bar{\omega}_\mu)]] \\ &= \hbar^{-2} \Omega^2 |V_{1\mu}^{40}|^2 / \{ [\bar{\omega}_\mu(\bar{\omega}_\mu - \bar{\omega}_L) - \Omega^2]^2 + \gamma_4^2(\bar{\omega}_\mu - \bar{\omega}_L)^2 \}. \end{aligned}$$

Эта функция имеет вид функции (20.12) в [8] и согласуется с выражением для контура спектра РФ облучаемой монохроматическим светом изолированной двухуровневой частицы, которое получено в работе [13] см. (3''). Если в знаменателе дроби (3'') вынести множитель $[(\omega_\sigma - \omega_0)^2 + (\gamma/2)^2]$, то после сокращения этой дроби полученное выражение как функция $\bar{\omega}_\sigma$ по виду совпадает с приведенным выше выражением $|b_A^{RF}(\bar{\omega}_\mu, t = \infty)|^2$.

Для сравнения контура $S_A^{RF}(\bar{\omega}_\mu)$ с контуром спектра $S_A^{SF}(\bar{\omega}_\eta)$ излучения фотона η спонтанной флуоресценции (СФ) частицы A, запишем по [8] (см. (18.13), § 18, гл. 5) спектр в виде лоренцева контура с максимумом $\hbar^{-2} |V_{1\eta}^{40}|^2$ (в единицах γ_4^2) при $\bar{\omega}_\eta = 0$ с полушириной $2\gamma_4$:

$$|b_{1\eta}(\omega_\eta, t = \infty)|^2 \equiv S_A^{SF}(\bar{\omega}_\eta) = \hbar^{-2} |V_{1\eta}^{40}|^2 / (\bar{\omega}_\eta^2 + \gamma_4^2),$$

где $\bar{\omega}_\eta = \omega_\eta - \omega_{41}$ и в матричном элементе $V_{1\eta}^{40}$ положено, что $\omega_\eta = \omega_{41}$.

Условием сохранения нормировки амплитуд $b_{1\eta}(\omega_\eta, t = \infty)$ является равенство $\sum_\eta |b_{1\eta}(\omega_\eta, t = \infty)|^2 = 1$, в котором суммирование по η выполняется при учете всех равновероятных направлений распространения фотона η (с двумя состояниями его поляризации) и всех возможных значений его частоты ω_η . Результат такого суммирования выглядит как замена числителя $\hbar^{-2} |V_{2\eta}^{40}|^2$ в приведенном выше выражении $b_{1\eta}(\omega_\eta, t) = \infty$ на константу γ_4/π (см. (20.9а) на стр. 230 в [8])

с последующим интегрированием по $d\omega_\eta$ полученного выражения. Окончательно имеем

$$\int_{-\infty}^{\infty} \gamma_4 d\omega_\eta / [\pi(\omega_\eta^2 + \gamma_4^2)] = 1..$$

Используя приведенные выше выражения $b_\chi(\bar{\omega}_\chi, t = \infty)$, $\chi = \mu, \sigma, \nu$ получаем

$$\begin{aligned} S_\mu(\bar{\omega}_\mu) &= \hbar^{-2} \Omega^2 \{ |V_{2\mu}^{40}|^2 [(\bar{\omega}_\mu + 2\Delta)^2 + \gamma_3^2] + \\ &+ |V_{2\mu}^{30}|^2 (w^2 + \tilde{\gamma}^2) + 2|V_\mu^{40}| |V_{2\mu}^{30}| \\ &\times [w(\bar{\omega}_\mu + 2\Delta) - \gamma_3 \tilde{\gamma}] \} / |F_\mu(\bar{\omega}_\mu)|^2, \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} S_\sigma(\bar{\omega}_\sigma) &= \hbar^{-2} \Omega^2 |V_{1\sigma}^{40}|^2 [(\bar{\omega}_\sigma + 2\Delta)^2 + \gamma_3^2] / |F_\sigma(\bar{\omega}_\sigma)|^2 \\ S_\nu(\bar{\omega}_\nu) &= \hbar^{-2} \omega^2 |V_{2\nu}^{30}|^2 w^2 / |F_\nu(\bar{\omega}_\nu)|^2. \end{aligned}$$

Функции $S_\chi(\bar{\omega}_\chi)$ отражают довольно сложные (для аналитического рассмотрения) зависимости положения и формы контуров спектров от значений параметров частиц, фотона облучения и рассматриваемого фотона РФ. Поэтому определение таких зависимостей проведено на основе анализа совокупности графических изображений (рисунков) функций $S_\chi(\bar{\omega}_\chi)$, которые получены при использовании системы yotx.ru и системы MATLAB 6.5. В качестве получения начального общего представления относительно характерного вида этих зависимостей рассмотрены изображения функций $S_\chi(\bar{\omega}_\chi)$ для отдельных, частных значений параметров частиц и поля облучения, при выборе которых условия регистрации фотона коллективной или селективной РФ представляются наиболее простыми. При этом отметим, что по виду приведенных выражений для спектров можно заключить, что форма их контуров определяется в основном видом зависимости от $\bar{\omega}_\chi$ функций $|F_\chi(\bar{\omega}_\chi)|^2$, так как значения этих функций в достаточно широкой области частот вокруг $\bar{\omega}_\chi = 0$ изменяются намного больше, чем значения функций $|V_{1\chi}^{40}|^2$, $|V_{2\chi}^{30}|^2$ и $|V_{1\mu}^{40}| |V_{2\mu}^{30}|$. Поэтому при получении изображений контуров $S_\chi(\bar{\omega}_\chi)$ предполагалось, что функции $|V_{1\chi}^{20}|^2$, $|V_{2\chi}^{30}|^2$ и $|V_{1\mu}^{40}| |V_{2\mu}^{30}|$ являются постоянными, взятыми при $\omega_\chi = \omega_{41}$, и рассматриваются как параметры, характеризующие строение частиц.

Прежде всего рассмотрены рисунки, полученные графическими изображениями функций $S_A^{RF}(\bar{\omega}_\mu)$. В этих функциях значения частоты, как отмечено выше, записано в единицах γ_4 и соответственно, значения параметров $\hbar^{-2} |V_{1\mu}^{40}(\omega_\mu = \omega_{41})|^2$ и Ω^2 записаны в единицах γ_4^2 ; при этом значение функции $S_A^{RF}(\bar{\omega}_\mu)$ при каком-то значении ее аргумента представляет собой положительное вещественное число, так что по оси ординат (в используемой для рисунков декартовой системы координат) откладываются положительные вещественные числа, а по оси абсцисс — значения $\bar{\omega}_\mu$ в единицах γ_4 (как и на рисунках, которые приведены в следующем разделе настоящей работы).

Для случая резонансного облучения ($\bar{\omega}_L = 0$) сделаны, например, такие заключения: при интенсивности облучения, характеризуемой значением $\Omega = 0.1$, контур $S_A^{RF}(\bar{\omega}_\mu)$ имеет максимум 10^2 при $\bar{\omega}_\mu = 0$ с полушириной 2×10^{-2} ; при $\Omega = 1$ контур $S_A^{RF}(\bar{\omega}_\mu)$ имеет две компоненты при $\bar{\omega}_\mu = -0.7$ и $\bar{\omega}_\mu = 0.7$ с максимумами, равными 1.3; при $\Omega = 10$ контур $S_A^{RF}(\bar{\omega}_\mu)$ имеет два пика: при $\bar{\omega} = 10$ и $\bar{\omega} = -10$ с максимумами, равными 1, и полушириной, равной 1.

Будем, как обычно, использовать название „слабая накачка“ для облучения частицы A импульсом света такой интенсивности, что $\Omega < 1$, и „сильная накачка“ — для облучения такой интенсивности, что $\Omega > 1$.

По виду отмеченных особенностей и всей совокупности полученных рисунков при других значениях Ω сделано заключение: при слабой накачке резонансным облучением изолированной частицы A спектральная линия ее РФ намного уже спектральной линии ее СФ, и в пределе $\Omega \rightarrow 0$ контур $S_A^{RF}(\bar{\omega}_\mu)$ имеет лоренцево представление $\delta(\bar{\omega}) = \lim_{\delta \rightarrow 0} \varepsilon / [\pi(\varepsilon^2 + \bar{\omega}^2)]$.

При $\Omega \rightarrow 1$ вид контура $S_A^{RF}(\bar{\omega}_\mu)$ приближается по виду к контуру $S_A^{SF}(\bar{\omega}_\mu)$, а при $\Omega \gg 1$ контур $S_A^{RF}(\bar{\omega}_\mu)$ расщепляется на две компоненты с максимумами, равными 1, при $\bar{\omega} = \pm\Omega$ с полушириной, равной 1.

Рассмотрены также изображения функций $S_A^{RF}(\bar{\omega}_\mu)$ при квазирезонансном облучении ($\bar{\omega} \neq 0$). Например, при облучении с частотой $\bar{\omega}_L = 10$ при $\Omega = 0.1$ контур $S_A^{RF}(\bar{\omega}_\mu)$ имеет максимум 10^4 , который расположен при $\bar{\omega}_\sigma = 10$ с полушириной $\approx 2 \times 10^{-4}$. По совокупности полученных рисунков сделано заключение, что при слабой накачке квазирезонансным облучением частота максимума функции $S_A^{RF}(\bar{\omega}_\mu)$ совпадает с частотой облучения, значение этого максимума больше, а его полуширина меньше по сравнению с соответствующими значениями функции $S_A^{RF}(\bar{\omega}_\mu)$ при резонансном облучении. При сильной накачке спектр $S_A^{RF}(\bar{\omega}_\mu)$ имеет две компоненты. Максимум одной из них расположен при $\bar{\omega}_\mu > \Omega$, а другой — при таком отрицательном значении частоты $\bar{\omega}_\mu$, что $|\bar{\omega}_\mu| > \Omega$; максимум первой из них несколько больше максимума второй.

При использовании системы вычисления интегралов WolframAlfa проверено выполнение условия сохранения нормировки, которое с учетом (см. выше) замены $\hbar^{-2} |V_{1\mu}^{40}(\omega_\mu = \omega_{41})|^2$ на γ_4/π при выполнении суммирования по всем направлениям распространения фотона μ свелось к проверке равенства

$$\pi^{-1} \int_{-\infty}^{+\infty} S_A^{RF}(\bar{\omega}_\mu) d\bar{\omega}_\mu = 1.$$

Иллюстрации и обсуждения вида контуров спектров

Некоторые из примеров изображений контуров $S_A^{RF}(\bar{\omega}_\mu)$ приведены штрихованными тонкими кривыми

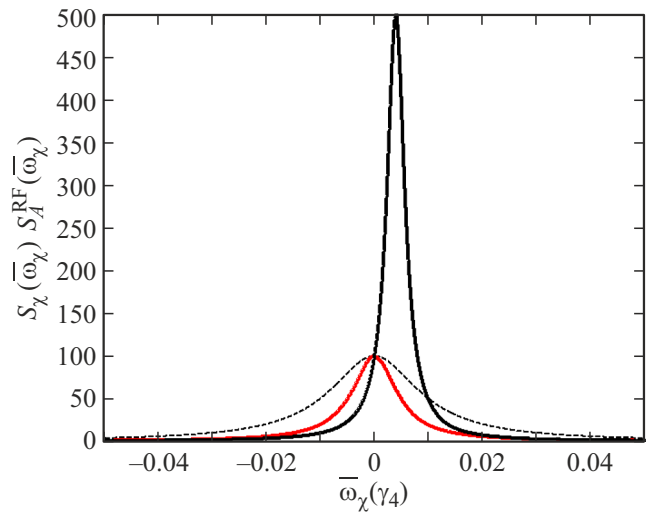


Рис. 2. Пример вида контуров спектров коллективной и селективной РФ одинаковых, слабо взаимодействующих частиц при слабой накачке частицы резонансным облучением (подробности в тексте).

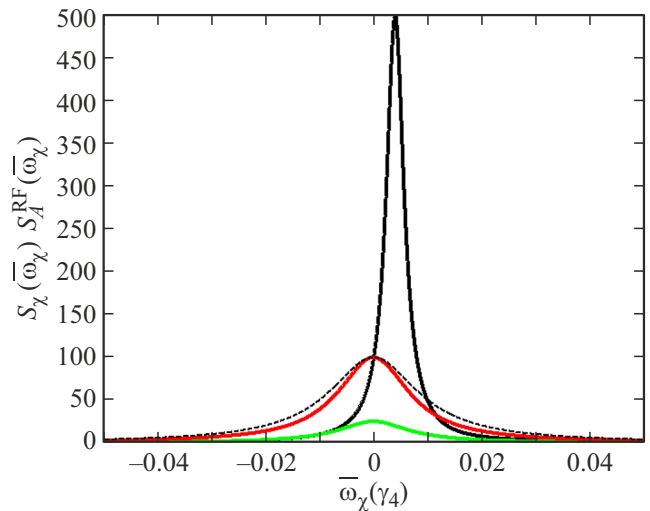


Рис. 3. Пример вида контуров спектров РФ частиц с различным затуханием возбужденных состояний частиц при слабой накачке частицы резонансным облучением.

черного цвета на расположенных ниже рисунках среди примеров изображений функций $S_\chi(\bar{\omega}_\chi)$. На этих рисунках (как отмечено выше) по оси ординат отложены положительные вещественные числа, а по оси абсцисс — частота $\bar{\omega}$ в единицах γ_4 , подразумевая при этом, что $\bar{\omega} \equiv \bar{\omega}_\mu$ при рассмотрении функции $S_\mu(\bar{\omega}_\mu)$, $\bar{\omega} = \bar{\omega}_\sigma$ при рассмотрении функции $S_\sigma(\bar{\omega})$ и $\bar{\omega} = \bar{\omega}_v$ при рассмотрении функции $S_v(\bar{\omega}_v)$. Функция $S_\sigma(\bar{\omega}_\sigma)$ изображается кривой красного цвета, функция $S_v(\bar{\omega}_v)$ — кривой зеленого цвета, функция $S_\mu(\bar{\omega}_\mu)$ — кривой черного цвета. С целью наглядного сравнения, разные функции $S_\chi(\bar{\omega}_\chi)$ изображаются или тонкими, или утолщенными кривыми.

Рассмотрены изображения функций $S_\chi(\bar{\omega}_\chi)$ одинаковых частиц ($\gamma_3 = \gamma_4 = \tilde{\gamma}$, $\Delta = 0$), взаимодействие которых характеризуется различными значениями w , при резонансном облучении ($\bar{\omega}_L = 0$) такой интенсивности, что $\Omega = 0.1$. Принято, что ориентация не параллельных диполей перехода частиц и выбор параметров фотонов $\chi \div \mu$, σ , ν таковы, что с учетом неравенства $0 \leq \Delta \ll \omega_{41}$, ω_{32} при рассмотрении функции $S_\mu(\bar{\omega}_\mu)$ можно полагать справедливым условие $|V_{1\mu}^{40}| = |V_{2\mu}^{30}| = \hbar\gamma_4$, при рассмотрении функции $S_\sigma(\bar{\omega}_\sigma)$ — условие $|V_{1\sigma}^{40}| = \hbar\gamma_4$ и $|V_{2\sigma}^{30}| = 0$, а при рассмотрении функции $S_\nu(\bar{\omega}_\nu)$ — условие $|V_{2\nu}^{30}| = \hbar\gamma_4$ и $|V_{1\nu}^{40}| = 0$. Изображения таких функций $S_\chi(\bar{\omega}_\chi)$ при слабом взаимодействующих частицах ($w = 1$) иллюстрирует рис. 2.

Отметим, что в рассматриваемом случае контур $S_\sigma(\bar{\omega}_\sigma)$ практически точно совпадает с контуром $S_\nu(\bar{\omega}_\nu)$, поэтому на рис. 2 эти контуры отображаются одной кривой красного цвета. Максимум контура коллективной РФ, равный 5×10^2 , сдвинут на 5×10^{-3} от $\bar{\omega}_\mu = 0$ и имеет полуширину 5×10^{-3} , а максимумы контуров компонент селективной РФ приходятся на $\bar{\omega}_\sigma = \bar{\omega}_\nu = 0$ и совпадают с максимумом $S_A^{RF}(\bar{\omega}_\mu)$, но имеют в два раза меньшую полуширину. При этом получено

$$\begin{aligned} \pi^{-1} \int_{-\infty}^{\infty} S_\mu(\bar{\omega}_\mu) d\bar{\omega}_\mu &\equiv \bar{S}_\mu = 1, \\ \pi^{-1} \int_{-\infty}^{\infty} S_\sigma(\bar{\omega}_\sigma) d\bar{\omega}_\sigma &\equiv \bar{S}_\sigma = 0.50125, \\ \pi^{-1} \int_{-\infty}^{\infty} S_\nu(\bar{\omega}_\nu) d\bar{\omega}_\nu &\equiv \bar{S}_\nu = 0.49875. \end{aligned}$$

Отметим, что значение $\bar{S}_\mu$ представляет собой заселенность коллективного основного состояния пары частиц при коллективной РФ, значение $\bar{S}_\sigma$ — заселенность основного состояния частицы A , значение $\bar{S}_\nu$ — заселенность основного состояния частицы B при селективной РФ (как в [5]), так что приведенные равенства свидетельствуют о выполнении условия сохранения нормировки амплитуд состояний полной составной системы для установившегося режима коллективной ($\bar{S}_\mu = 1$) и селективной РФ ($\bar{S}_\sigma + \bar{S}_\nu = 1$). По сравнению значений величины $\bar{S}_\sigma$ и величины $\bar{S}_\nu$ можно судить о преобладании излучения фотона селективной РФ той или иной частицей. В дальнейшем, когда проверено выполнение равенства $\bar{S}_\sigma + \bar{S}_\nu = 1$, для сокращения записи равенство $\bar{S}_\mu = 1$ приводиться не будет.

В случае РФ частиц с $w = 5$ максимум $S_\sigma(\bar{\omega}_\sigma)$ совпадает с максимумом $S_A^{RF}(\bar{\omega}_\mu)$, равным 1×10^2 , тогда как максимум $S_\nu(\bar{\omega}_\nu)$ равен 2.5×10^3 , и полученные значения $\bar{S}_\sigma = 0.03865$ и $\bar{S}_\nu = 0.96135$ отражают преобладание излучения фотона селективной РФ частицей B ; оно выражено еще сильнее в случае РФ частиц с

$w = 10$, при котором получены значения $\bar{S}_\sigma = 0.00995$ и $\bar{S}_\nu = 0.99005$.

В результате рассмотрения отмеченных и всей совокупности соответствующих полученных рисунков сделано заключение, что контуры $S_\chi(\bar{\omega}_\chi)$ одинаковых частиц имеют резко увеличенные значения максимумов и уменьшенные значения полуширины по сравнению с соответствующими значениями контура $S_A^{RF}(\bar{\omega}_\mu)$. При слабом взаимодействии частиц излучение фотона селективной РФ может быть отнесено с примерно равной вероятностью как к частице A , так и к частице B , но при сильном взаимодействии частиц значительно преобладает вероятность излучения частицей B .

Противоположная закономерность имеет место при квазирезонансном облучении одинаковых частиц. Так, при облучении частиц с $w = 1$ светом с частотой $\bar{\omega}_L = 10$ фотон селективной РФ практически полностью излучается частицей A : контур $\bar{S}_\sigma$ совпадает с соответствующим контуром $S_A^{RF}(\bar{\omega}_\mu)$ (см. выше). Но, как показали графические изображения контуров $S_\chi(\bar{\omega}_\chi)$, увеличение силы взаимодействия частиц приводит к уменьшению высоты всех контуров $S_\chi(\bar{\omega}_\chi)$ и увеличению их полуширины по сравнению с соответствующими значениями контура $S_A^{RF}(\bar{\omega}_\mu)$; при этом, например, для частиц с $w = 5$ получены значения $\bar{S}_\sigma = 0.80156$ и $\bar{S}_\nu = 0.19844$, а для частиц с $w = 10$ получено $\bar{S}_\sigma = 0.50249$ и $\bar{S}_\nu = 0.49751$, т.е. излучение фотона селективной РФ приходится примерно одинаково на обе сильно взаимодействующие частицы при квазирезонансном облучении, тогда как при резонансном облучении таких частиц (см. выше) значительно преобладает излучение частицей B .

Рассмотрены изображения контуров $S_\chi(\bar{\omega}_\chi)$ частиц, у которых различаются скорости распада возбужденного состояния, например для частиц с параметрами $\Delta = 0$, $w = 1$, $\gamma_3 = 4$, $\gamma_4 = 1$, при слабой накачке частицы A резонансным облучением. Приняты соответствующие соотношения: $|V_{1\mu}^{40}|^2 = |V_{1\sigma}^{40}|^2$, $|V_{2\nu}^{30}|^2 = 4$, $|V_{1\sigma}^{40}||V_{2\nu}^{30}| = 2$, записываемые в единицах $\hbar^2\gamma_4^2$. Получено $\bar{S}_\sigma = 0.80008$ и $\bar{S}_\nu = 0.19992$. Изображения контуров спектров РФ таких частиц иллюстрирует рис. 3.

Сравнивая рис. 3 с рис. 2, заключаем, что увеличение значения γ_3 от $\gamma_3 = 1$ до $\gamma_3 = 4$ приводит к размытию контуров $S_\chi(\bar{\omega}_\chi)$ с уменьшением отмеченного при $\gamma_3 = 1$ преобладания излучения фотона селективной РФ частицей A .

Рассмотрены изображения контуров $S_\chi(\bar{\omega}_\chi)$ при резонансном облучении с $\Omega = 0.1$ частиц со значительно различающимися частотами их собственных переходов, например при $\Delta = 10$, $w = 1$, $\gamma_3 = 1$. Учитывая, что $\Delta \ll \omega_{32}$, ω_{41} , значения матричных элементов оператора V для переходов между состояниями частиц с излучением фотона РФ выбраны такими же, как при рассмотрении изображений $S_\chi(\bar{\omega}_\chi)$, приведенных на рис. 2. В этом случае контур $S_\sigma(\bar{\omega}_\sigma)$ практически точно повторяет контур $S_A^{RF}(\bar{\omega}_\mu)$ с максимумом 10^2 при $\bar{\omega}_{\sigma=0}$ и полу-

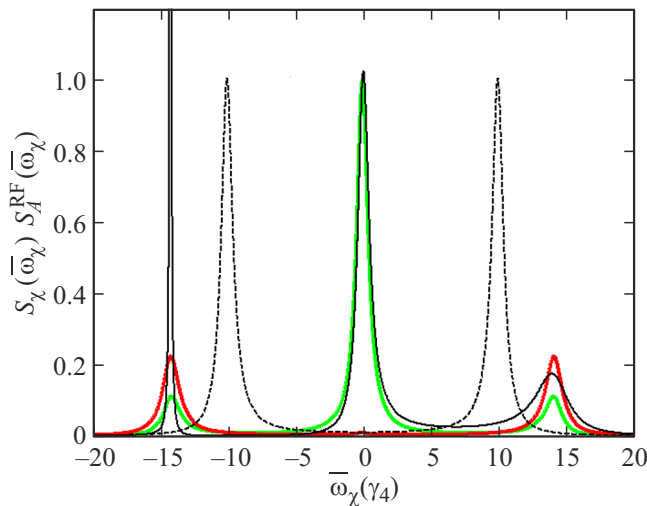


Рис. 4. Пример вида контуров спектров РФ сильно взаимодействующих одинаковых частиц при сильной накачке частицы резонансным облучением.

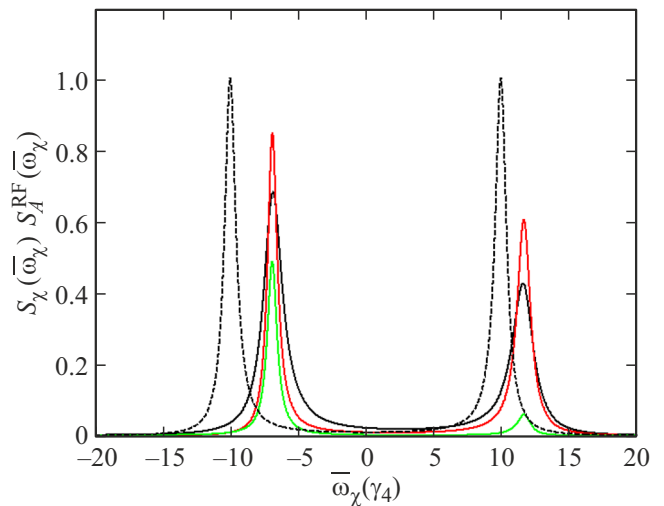


Рис. 6. Пример вида контуров спектров РФ частиц с различными значениями частот их собственных переходов при сильной накачке частицы резонансным облучением.

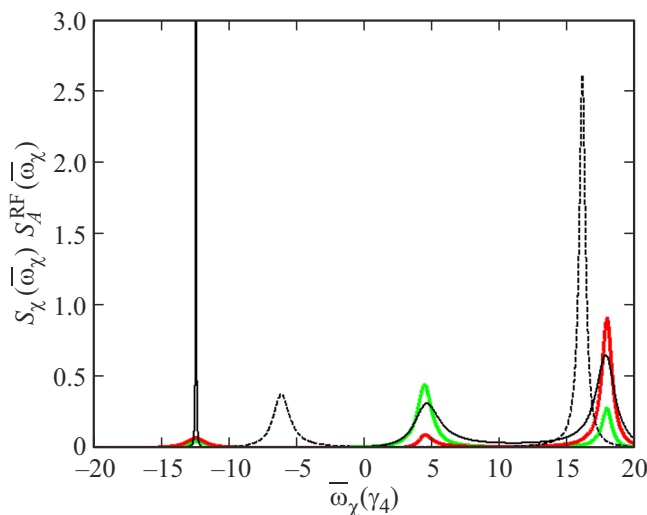


Рис. 5. Пример вида контуров спектров РФ сильно взаимодействующих одинаковых частиц при сильной накачке частицы квазирезонансным облучением.

шириной 2×10^{-2} , тогда как максимум контура $S_v(\bar{\omega}_v)$ при $\bar{\omega}_\mu = 0$ равен 2×10^{-1} с полушириной 2×10^{-2} . Максимум контура $S_\mu(\bar{\omega}_\mu)$ при $\bar{\omega}_\sigma = 0$ равен 1.1×10^2 с полушириной 2×10^{-2} . Получено $\bar{S}_\sigma = 0.99751$ и $\bar{S}_v = 0.00249$, а при более сильном взаимодействии частиц, характеризуемом значением $w = 5$, получено $\bar{S}_\sigma = 0.94131$ и $\bar{S}_v = 0.05896$, так что с увеличением силы взаимодействия частиц ослабляется преобладание рассматриваемого излучения фотона частицей A.

Аналогичные результаты отмечены при рассмотрении контуров спектров РФ при слабой накачке частицы A квазирезонансным облучением.

Рассмотрены изображения функций $S_\chi(\bar{\omega}_\chi)$ одинаковых частиц, взаимодействие которых характеризуется

значением $w = 1$, при резонансном облучении с такой интенсивностью, что $\Omega = 10$. Значения матричных элементов оператора V для переходов между состояниями частиц с излучением фотона РФ выбраны такими же, как при рассмотрении изображений $S_\chi(\bar{\omega}_\chi)$, приведенных на рис. 2. Спектры $S_\mu(\bar{\omega}_\mu)$ и $S_\sigma(\bar{\omega}_\sigma)$ практически совпадают со спектром $S_A^{RF}(\bar{\omega}_\mu)$, который имеет два максимума при $\bar{\omega}_\sigma = \pm 10$, равные 1, с полушириной 1. Спектр $S_\sigma(\bar{\omega}_\sigma)$ имеет три максимума: один при $\omega = 0$ и два — при $\bar{\omega} = \pm 10$. Каждый из этих максимумов имеет высоту ≈ 0.01 . Получено $\bar{S}_\sigma = 0.98076$, $\bar{S}_v = 0.01924$. В случае же частиц с $w = 10$ каждый из спектров $S_\mu(\bar{\omega}_\mu)$ и $S_v(\bar{\omega}_v)$ имеет три максимума: один при $\bar{\omega} = 0$ и два при $\bar{\omega} \pm 14$. Спектр $S_\sigma(\bar{\omega}_\mu)$ имеет два максимума при $\bar{\omega}_\sigma = \pm 14$. Получено $\bar{S}_\sigma = 0.33775$, $\bar{S}_v = 0.66225$. Изображения этих спектров приведены на рис. 4. Для удобства рассмотрения вида функций $S_\chi(\bar{\omega}_\chi)$ их значения по оси ординат ограничены значением 1.2, в то время как максимум $S_\mu(\bar{\omega}_\mu)$ при $\bar{\omega}_\mu = -14$ равен 6.

Как показали графические изображения, при квазирезонансном облучении частицы A светом с частотой $\bar{\omega}_L = 10$ при $\Omega = 10$ фотон селективной РФ частиц, взаимодействие которых характеризуется значением $w = 1$, практически полностью (как и в случае слабой накачки) излучается частицей A: контур $\bar{S}_\sigma$ совпадает с соответствующим контуром $S_A^{RF}(\bar{\omega}_\mu)$, имеющим два максимума, один из которых равен ≈ 0.5 при $\bar{\omega}_\mu \approx -6$ и другой равен ≈ 2.5 при $\bar{\omega}_\mu \approx 16$. Получено $\bar{S}_\sigma = 0.98209$, $\bar{S}_v = 0.01791$, а для РФ частиц с $w = 10$ получено $\bar{S}_\sigma = 0.54104$ и $\bar{S}_v = 0.45896$, что свидетельствует (так же, как и в приведенном выше случае слабой накачки, об ослаблении преобладания рассматриваемого излучения фотона частицей A. Для этого случая вид контуров $S_\chi(\bar{\omega}_\chi)$ представлен на рис. 5. Для удобства рассмотрения вида функций $S_\chi(\bar{\omega}_\chi)$ их значения по

оси ординат ограничены значением 3, в то время как максимум $S_\mu(\bar{\omega}_\mu)$ при $\bar{\omega}_\mu = -12.5$ равен 5.

Рассмотрены изображения функций $S_\chi(\bar{\omega}_\chi)$ для частиц с разными скоростями распада возбужденного состояния при сильной накачке резонансным облучением. Сделано заключение: так же как при слабой накачке, увеличение значения γ_3 приводит к размытию контуров с увеличением излучения фотона РФ частицей А.

Рассмотрены изображения $S_\chi(\bar{\omega}_\chi)$ при резонансном облучении частиц с различными значениями частот их собственных переходов. Например, при таком облучении, что $\Omega = 10$, для РФ частиц с параметрами $\Delta = 10$, $w = 1$, $\gamma_3 = 1$ получено $\bar{S}_\sigma = 0.99359$, $\bar{S}_\nu = 0.00641$, а для РФ частиц с параметрами $\Delta = 10$, $w = 10$, $\gamma_3 = 1$ получено $\bar{S}_\sigma = 0.73098$, $\bar{S}_\nu = 0.26902$, что свидетельствует о преобладании излучения фотона РФ частицей А, как и в отмеченном выше случае слабой накачки частиц с такими же параметрами. Изображения этих спектров приведены на рис. 6.

Каждую из отмеченных закономерностей связи характеристик спектров с параметрами частиц, условиями облучения и регистрации фотона РФ затруднительно (как отмечено выше) записать в простом аналитическом виде. Например, отмеченное по результатам рассмотрения графических изображений функций $S_\chi(\bar{\omega}_\chi)$ увеличение вероятности излучения фотона селективной РФ частицей В с ростом силы взаимодействия частиц определяется не только тем, что полученное выражение $\bar{S}_\nu$ пропорционально w^2 , но и тем, что это же выражение обратно пропорционально сумме слагаемых, одно из которых также пропорционально w^2 . В такой ситуации затруднительно составить ясное представление о физическом смысле рассматриваемой закономерности. Подобные трудности имеют место и при рассмотрении других закономерностей упомянутой связи, отмеченных в результате рассмотрения графических изображений функций $S_\chi(\bar{\omega}_\chi)$. Однако установление физического смысла таких закономерностей внесло бы значительный вклад в теорию коллективной и селективной РФ взаимодействующих частиц, поэтому в отдельной работе предполагается сделать попытку продвинуться в этом направлении.

Заключительные замечания

Приведены примеры графических изображений контуров спектров РФ двух взаимодействующих наночастиц. Анализ вида этих изображений позволил составить общее представление относительно вида характерных спектров при простых условиях регистрации фотона коллективной или селективной РФ. Такое представление полезно иметь в виду при отнесении наблюдаемых контуров к той или иной компоненте спектра РФ. Полученные выражения для контуров спектров РФ отражают информацию относительно зависимости положения

максимумов контуров, их количества, величины и полуширины от значений параметров частиц, их облучения и детектирования фотона РФ. Эту информацию можно использовать для того, чтобы получить оценки значений параметров строения и свойств наночастиц по экспериментальным данным их спектров РФ, а также для подбора значений параметров частиц при рассмотрении возможности использования их в качестве материала для различных оптоэлектронных устройств.

Конфликт интересов

Автор заявляет, что у него нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] H.S. Freedhoff. Phys. Rev. A, **19** (3), 1132 (1979). DOI: 10.1103/PhysRevA.19.1132
- [2] E. Darsheshdar, M. Hugbart, R. Bachelard, C. J. Villas-Boas. Phys. Rev. A, **103**, 053702 (2021). DOI: 10.1103/PhysRevA.103.053702
- [3] Y. Ben-aryen, C. M. Bowden., IEEE J. Quant. Electronics, **24** (7), 1366 (1988).
- [4] В.А. Морозов. Опт. и спектр., **130** (8), 1256 (2022). DOI: 10.61011/OS.2025.02.59972.6345-24
- [5] В.А. Морозов. Опт. и спектр., **131** (8), 1133 (2023). DOI: 10.61011/OS.2025.02.59972.6345-24
- [6] А.И. Мохов, А.А. Макаров. Опт. и спектр., **127** (1), 13 (2019). DOI: 10.61011/OS.2025.02.59972.6345-24 [A.I. Mokhov, A.A. Makarov. Opt. Spectrosc., **127** (1), 7 (2019)].
- [7] И.Ю. Еремчев, Н.А. Лозинг, А.А. Баев, А.О. Тарасевич, М.Г. Гладуш, А.А. Рожентсов, А.В. Наумов. Письма в ЖЭТФ, **108** (1), 26 (2018). DOI: 10.1134/S0370274X18130064 [I.Yu. Eremchev, N.A. Lozing, A.A. Baev, A.O. Tarasevich, M.G. Gladush, A.A. Rozhentsov, A.V. Naumov. JETP Letters, **108** (1), 30 (2018). DOI: 10.1134/S0021364018130076].
- [8] В. Гайтлер. *Квантовая теория излучения* (Изд-во иностр. лит., М., 1956). [W. Heitler. *The quantum theory of the radiation* (Oxford at the Clarendon Press, 1954)].
- [9] М.О. Скалли, М.С. Зубайри. *Квантовая оптика* (ФИЗМАТЛИТ, М., 2003). [M.O. Scully, M.S. Zubairy. *Quantum optics* (Cambridge University Press, 1997)].
- [10] Р. Фейнман, А. Хибс. *Квантовая механика и интегралы по траекториям* (Мир, М., 1968). [R.P. Feynman, A.R. Hibbs. *Quantum mechanics and path integrals* (McGraw-Hill Book Company, N.Y., 1965)].
- [11] В.А. Морозов. Опт. и спектр., **129** (12), 1602 (2021). DOI: 10.61011/OS.2025.02.59972.6345-24
- [12] В.А. Морозов. Журн. физ. химии, **95** (8), 1284 (2021). DOI: 10.31857/S0044453721080203 [V.A. Morozov. Russ. J. Phys. Chem. A, **95** (8), 1726 (2021). DOI: 10.1134/S0036024421080203].
- [13] В.А. Морозов. Опт. и спектр., **24** (3), 458 (1968).