

# Модель для описания релаксации квантовомеханических систем с близко лежащими уровнями энергий<sup>1)</sup>

И. В. Вовченко<sup>+\*2)</sup>, В. Ю. Шишков<sup>+\*×</sup>, А. А. Зябловский<sup>+\*×</sup>, Е. С. Андрианов<sup>+\*×</sup>

<sup>+</sup>Московский физико-технический институт, 141700 Долгопрудный, Россия

<sup>\*</sup>Институт теоретической и прикладной электродинамики, 125412 Москва, Россия

<sup>×</sup>Всероссийский научно-исследовательский институт автоматики им. Н. Л. Духова, 127055 Москва, Россия

Поступила в редакцию 31 мая 2021 г.

После переработки 9 июня 2021 г.

Принята к публикации 9 июня 2021 г.

Существующие в настоящее время марковские модели релаксации квантовомеханических систем применимы либо в приближении, когда разность между собственными частотами много больше скоростей релаксации (глобальный подход), либо много меньше их (локальный подход). В данной работе предлагается модель для описания релаксации в системах, где существуют собственные частоты, разность между которыми близка к скоростям релаксаций. Показано, что в таком случае в управляющем уравнении на матрицу плотности появляются коэффициенты, которые в представлении взаимодействия явно зависят от времени. На примере двух взаимодействующих осцилляторов получены уравнения на числа заполнения мод системы. Показано, что в пределе малых по сравнению со скоростями релаксации разностей собственных частот числа заполнения в разработанном подходе асимптотически совпадают с числами заполнения в локальном подходе, а в случае больших разностей собственных частот – с числами заполнения в глобальном подходе.

DOI: 10.31857/S1234567821130103

**1. Введение.** В последнее время активно исследуются задачи о релаксации квантовых систем. Помимо фундаментального интереса, они также представляют практический интерес в связи с развитием технологий и возможностью манипулировать объектами на микро- и наномасштабах. В качестве примера можно привести спектроскопию одиночных молекул [1–4], спектроскопию на основе гигантского комбинационного рассеяния (SERS) [3, 5–7], управление квантовыми объектами, например, с помощью плазмонных пинцетов [8–10], и пр. В таких случаях некоторая выделенная система (атом, молекула и т.д.), динамика которой представляет интерес, взаимодействует с окружением (или резервуаром), которое, хотя и влияет на исследуемый объект, непосредственного интереса не представляет. Если учитывать степени свободы как исследуемого объекта, так и резервуара, то вместе они образуют единую эрмитову систему, и, в нерелятивистском приближении, ее динамика может быть описана уравнением Шредингера. Однако в общем случае такая единая эрмитова си-

стема обладает большим числом степеней свободы, поэтому исследование ее динамики не представляется возможным.

В некоторых практически важных случаях можно исключить переменные резервуара в предположении, что состояние резервуара не меняется (приближение Борна), и получить локальное по времени уравнение (приближение Маркова) [11–13]. После такого исключения можно получить уравнение с зависящими от времени осциллирующими слагаемыми (управляющее уравнение Блоха–Редфилда [14]). Однако, такое уравнение все еще остается достаточно сложным и требует дальнейшего упрощения [15, 16].

Существуют два основных способа, которые позволяют упростить полученное уравнение. Первый способ применяется тогда, когда точно известны собственные состояния системы, и разность между собственными частотами системы много больше характерных скоростей затухания. В таком случае зависящие от времени коэффициенты в управляющем уравнении являются быстро осциллирующими, и их можно усреднить по времени (*full secular approximation*) [11, 13, 17]. В результате получается управляющее уравнение на матрицу плотности системы (управляющее уравнение Горини–Косаковского–Сударшана–

<sup>1)</sup>См. дополнительные материалы к данной статье на сайте нашего журнала

<sup>2)</sup>e-mail: vovchenko@phystech.edu

Линдблада) [18, 19]. Такой подход называют глобальным. Можно показать, что глобальный подход гарантирует выполнение начал термодинамики [20–22].

В случае, когда разность между собственными частотами сравнима или меньше скоростей затухания, точность решения, полученного в рамках глобального подхода, может быть недостаточной [23, 24]. Например, это может иметь место при слабом взаимодействии между подсистемами с одинаковыми собственными частотами, когда расщепление уровней пропорционально константе связи. В таком случае, глобальный подход не выявляет наблюдаемых в эксперименте осцилляций заселенностей состояний подсистем [25]. Помимо того, что глобальный подход не описывает некоторые экспериментально наблюдаемые эффекты, для его применения нужно знать собственные состояния системы [12, 17, 26]. В случае, когда система состоит из большого количества взаимодействующих подсистем, например, атомов, молекул или кубитов, точное нахождение собственных состояний затруднительно.

Второй способ упрощения исходного уравнения называется локальным подходом и не требует точного нахождения собственных состояний системы. Локальный подход является предпочтительным, когда система состоит из большого числа подсистем. Сначала рассматриваются невзаимодействующие подсистемы, собственные состояния которых известны, и выводятся релаксационные операторы для каждой подсистемы в отдельности. Затем предполагается, что в случае взаимодействующих подсистем релаксационные операторы остаются такими же, как и для невзаимодействующих подсистем [22, 24]. При этом релаксационные операторы не учитывают изменения собственных значений энергии за счет взаимодействия между подсистемами. Из общих соображений ясно, что такой подход может быть применим только тогда, когда соответствующие константы связи между подсистемами малы по сравнению со скоростями релаксаций.

Таким образом, как локальный, так и глобальный подходы неприменимы в том случае, когда константа связи между подсистемами сравнима со скоростями релаксации. Однако в последнее время активно исследуются именно такие системы, где константы связи сравнимы со скоростями релаксации, так как для них находится большое количество приложений, например, в задачах фотоники [27], сенсорики [28, 29], лазерной физики [30–32] и химии [33, 34]. Отдельный интерес представляет особая точка в пространстве параметров (обычно констант связи и скоростей релаксаций), в которой несколько собственных час-

тот и собственных состояний становятся одинаковыми [35, 36]. Отметим, что локальный подход предсказывает существование особой точки, в которой расщепление спектра происходит пороговым образом. В свою очередь, в глобальном подходе особая точка полностью отсутствует. Однако, обе модели выйдут за границы своей применимости именно вблизи особой точки, поскольку вблизи особой точки скорости релаксации сравнимы с расщеплением уровней [24, 26]. В этой связи интерес представляет построение модели, которая, во-первых, была бы применима вблизи особой точки, и, во-вторых, в предельном случае большой константы связи воспроизводила бы глобальный подход, а в пределе слабой константы связи – локальный.

Настоящая статья посвящена построению модели релаксации систем, в которых скорости релаксации сравнимы с константой связи между подсистемами. Показано, что в этом случае в управляющем уравнении на матрицу плотности появляются коэффициенты, которые в представлении взаимодействия явно зависят от времени. На примере двух взаимодействующих осцилляторов получены управляющее уравнение и уравнения на числа заполнения мод системы. Показано, что в пределе малой по сравнению со скоростью релаксации константы связи разработанная модель асимптотически совпадает с локальным подходом, а в случае большой константы связи – с глобальным.

**2. Управляющее уравнение в частично секюлярном приближении.** Рассмотрим динамику полной системы, состоящей из двух компонент: выделенной системы  $S$  (далее просто система) и резервуаров  $R$ . До тех пор, пока явно рассматриваются степени свободы системы и резервуара, задача является эрмитовой, и ее динамика описывается уравнением фон Неймана [37] на матрицу плотности:

$$\frac{d\hat{\rho}(t)}{dt} = i \left[ \hat{\rho}(t), \hat{H}_S + \hat{H}_{SR} + \hat{H}_R \right]. \quad (1)$$

Здесь  $\hat{H}_S$  – гамильтониан системы,  $\hat{H}_R$  – гамильтониан резервуаров,  $\hat{H}_{SR} = \lambda \hat{S} \hat{R}$  – гамильтониан взаимодействия системы и резервуаров, где  $\lambda$  предполагается малым параметром по сравнению с собственными частотами системы. Для исключения степеней свободы резервуаров удобно перейти в представление взаимодействия

$$\hat{\rho}(t) = e^{-i(\hat{H}_S + \hat{H}_R)t} \hat{\rho}(t) e^{i(\hat{H}_S + \hat{H}_R)t}. \quad (2)$$

Тогда уравнение (1) примет вид

$$\frac{\partial \hat{\rho}}{\partial t} = i[\hat{\rho}, \hat{H}_{SR}], \quad \hat{H}_{SR} = \lambda \hat{S} \hat{R}, \quad (3)$$

$$\hat{S}(t) = e^{i\hat{H}st}\hat{S}e^{-i\hat{H}st}, \quad \hat{R}(t) = e^{i\hat{H}Rt}\hat{R}e^{-i\hat{H}Rt}. \quad (4)$$

Применяя теорию возмущений по параметру  $\lambda$  и формально интегрируя (1), в первом и втором порядке теории возмущений получаем (детали вычислений см. в [12]):

$$\hat{\rho}_1(t_0 + \Delta t) = i \int_{t_0}^{t_0 + \Delta t} dt_1 \left[ \hat{\rho}_0(t_0), \hat{S}(t_1)\hat{R}(t_1) \right] \quad (5)$$

$$\hat{\rho}_2(t_0 + \Delta t) = \quad (6)$$

$$= - \int_{t_0}^{t_0 + \Delta t} dt_1 \int_{t_0}^{t_1} dt_2 \left[ \left[ \hat{\rho}_0(t_0), \hat{S}(t_2)\hat{R}(t_2) \right], \hat{S}(t_1)\hat{R}(t_1) \right].$$

Далее будем предполагать (приближение Борна), что резервуар находится в тепловом равновесии во все моменты времени и его матрица плотности имеет вид  $\hat{\rho}_R(t) = \hat{\rho}_R^{th} = \exp(-\hat{H}_R/T) / Tr_R(\exp(-\hat{H}_R/T))$ , а матрица плотности всей системы представима в виде  $\hat{\rho}(t) = \hat{\rho}_S(t)\hat{\rho}_R^{th}$  (применимость такого приближения обсуждается ниже). Тогда можно вычислить след по переменным резервуара. В результате в выражениях (5) и (6) появятся слагаемые типа  $Tr_R(\hat{\rho}_R^{th}\hat{R}(t_1))$ .

Для многих видов резервуаров  $Tr_R(\hat{\rho}_R^{th}\hat{R}(t_1)) = 0$ . К таким резервуарам относится, например, резервуар свободного электромагнитного поля, а также различные дефазирующие резервуары. В таком случае  $\hat{\rho}_1(t) = 0$ .

Далее необходимо вычислить явную зависимость  $\hat{S}(t)$  от времени. Это заведомо можно сделать, если известны собственные состояния  $|k\rangle$  и собственные частоты  $\omega_k$  гамильтониана  $\hat{H}_S$ . Тогда можно записать:

$$\hat{S}(t) = e^{i\hat{H}st}\hat{S}e^{-i\hat{H}st} = \sum_{k,m} e^{i\Delta\omega_{km}t}\hat{S}_{km}, \quad (7)$$

где  $\hat{S}_{km} = \langle k|\hat{S}|m\rangle|k\rangle\langle m|$ , и  $\Delta\omega_{km} = \omega_k - \omega_m$ . Выражение (6) преобразуется в

$$\sum_{k',m',k,m} \hat{S}_{k'm'}\hat{\rho}_0(t_0)\hat{S}_{km} \times \quad (8)$$

$$\times \int_{t_0}^{t_0 + \Delta t} dt_1 e^{i(\Delta\omega_{km} + \Delta\omega_{k'm'})t_1} \int_{t_0 - t_1}^0 d\tau TR(\tau) e^{i\Delta\omega_{k'm'}\tau},$$

где  $\tau = t_2 - t_1$ , и  $TR(\tau) = Tr(\hat{\rho}_R^{th}\hat{R}(t_2)\hat{R}(t_1))$  – корреляционная функция резервуара.

Чтобы приближение Борна было справедливым, необходимо, чтобы интервал интегрирования,  $\Delta t$ ,

был много больше характерного времени установления равновесия в резервуаре  $\gamma_R^{-1}$ . В противном случае выделение системы из резервуара необосновано. В приближении Борна нижний предел интегрирования в последнем интеграле в (8) можно устремить к бесконечности:

$$\int_{t_0 - t_1}^0 d\tau TR(\tau) e^{i\Delta\omega_{k'm'}\tau} \simeq \int_{-\infty}^0 d\tau TR(\tau) e^{i\Delta\omega_{k'm'}\tau} = \int_0^{\infty} d\tau TR(\tau) e^{-i\Delta\omega_{k'm'}\tau} \equiv G_+(\Delta\omega_{k'm'}), \quad (9)$$

где  $G_+(\omega)$  – одностороннее преобразование Фурье корреляционной функции резервуара. Аналогично определяется и  $G_-(\omega)$  (см. до материал).

С другой стороны, чтобы описывать динамику затухания системы, необходимо, чтобы интервал  $\Delta t$  был меньше характерных времен затухания системы  $\gamma^{-1}$ :  $\Delta t \ll \gamma^{-1}$ . Таким образом, мы получаем ограничение на интервал интегрирования  $\Delta t$ :  $\gamma_R^{-1} \ll \Delta t \ll \gamma^{-1}$ . Далее будем предполагать, что условие  $\gamma_R^{-1} \ll \gamma^{-1}$  выполняется, и возможно одновременно применить приближение Борна и с хорошей точностью описать релаксацию системы. Во многих ситуациях такое соотношение действительно имеет место. Так, величину  $\gamma_R^{-1}$  можно оценить как  $\hbar/kT$  [38], где  $T$  – температура резервуара. Для оптического диапазона при комнатной температуре имеем  $\hbar/kT \sim 10^{-14}$  с. В свою очередь, характерные времена релаксаций лежат в диапазоне  $10^{-9} - 10^{-13}$  с.

В приближении (9) первый интеграл в (8) можно вычислить явно:

$$\int_{t_0}^{t_0 + \Delta t} dt_1 e^{i(\Delta\omega_{km} + \Delta\omega_{k'm'})t_1} = e^{i(\Delta\omega_{km} + \Delta\omega_{k'm'})t_0} \frac{e^{i(\Delta\omega_{km} + \Delta\omega_{k'm'})\Delta t} - 1}{i(\Delta\omega_{km} + \Delta\omega_{k'm'})}. \quad (10)$$

Если предположить, что  $\Delta t \gg 1/\Delta\omega$ , то правая часть в (10) является быстро осциллирующей и переходит в  $\delta_{\omega_{km}, -\omega_{k'm'}}\Delta t$ , где  $\delta_{\alpha,\beta}$  – символ Кронекера. Важно, что (10) в таком случае становится пропорциональным  $\Delta t$ . Использование такого приближения в (10) и последующая его подстановка в (8) и затем в (6) позволяет получить разностное уравнение вида  $\Delta\rho(t_0)/\Delta t = L[\rho(t_0)]$ , где  $L$  – релаксационный оператор, который содержит скорости затухания  $\gamma$ . Поскольку рассматриваются времена  $\Delta t \ll \gamma^{-1}$ , полученное разностное уравнение заменяют дифференциальным, которое носит на-

звание управляющее уравнение в форме Горини–Косаковского–Сударшана–Линдблада [18, 19]. Временная производная в этом уравнении иногда называется “крупнозернистой” производной.

Однако собственные частоты системы могут быть сравнимы или меньше  $\gamma$ , и обозначенное ранее требование  $\gamma_R^{-1} \ll \Delta t \ll \gamma^{-1}$  может быть несовместимо с требованием  $\Delta t \gg 1/\Delta\omega$ . Слагаемые в (8), для которых  $\Delta\omega^{-1} \sim \Delta t$  или  $\Delta\omega^{-1} \gg \Delta t$ , уже нельзя считать быстро осциллирующими.

Практически важными являются ситуации, когда система состоит из взаимодействующих подсистем. Предположим, что характерная константа связи  $\Omega$  между ними много меньше собственных частот подсистем  $\omega$ . В этом случае всевозможные разности собственных частот  $\Delta\omega$  можно разделить на большие, порядка собственных частот  $\omega$  не взаимодействующих подсистем, и малые, порядка константы связи  $\Omega$ . Поступим следующим образом: выберем интервал интегрирования  $\Delta t$  таким образом, чтобы выполнялось условие  $\omega^{-1} \ll \Delta t \ll \Omega^{-1}$ . Тогда, если  $\Delta\omega \sim \omega$ , выражение (10) переходит в  $\delta_{\omega_{km}, -\omega_{k'm'}} \Delta t$ , а если  $\Delta\omega \sim \Omega$ , то в  $e^{i(\Delta\omega_{km} + \Delta\omega_{k'm'})t_0} \Delta t$ . В обоих случаях получаются выражения, пропорциональные  $\Delta t$ . Тогда, после подстановки таких разложений (10) в (8), а затем в (6), получится выражение, пропорциональное  $\Delta t$ . В итоге получается разностное уравнение вида  $\Delta\hat{\rho}_S(t_0)/\Delta t = L[t_0, \hat{\rho}_S]$ , однако теперь релаксационный супероператор будет содержать осциллирующие слагаемые вида  $e^{i\Omega t_0}$ . Такой подход можно назвать частично секулярным подходом.

Подчеркнем, что в данном рассмотрении не накладывается никакого ограничения на соотношение между скоростями релаксаций и константой связи. Единственное требование, которому необходимо удовлетворить при таком рассмотрении, это выполнение для собственных частот не взаимодействующих подсистем соотношения  $\omega^{-1} \ll \gamma^{-1}, \Omega^{-1}$ .

Рассмотрим данный подход на примере двух связанных осцилляторов с одинаковыми собственными частотами ( $\omega_1 = \omega_2 = \omega$ ), каждый из которых взаимодействует со своим резервуаром. Гамильтониан системы и резервуаров имеет следующий вид:

$$\hat{H} = \hat{H}_S + \hat{H}_{SR} + \hat{H}_R, \quad (11)$$

$$\hat{H}_S = \omega \hat{a}_1^\dagger \hat{a}_1 + \omega \hat{a}_2^\dagger \hat{a}_2 + \Omega(\hat{a}_1^\dagger \hat{a}_2 + \hat{a}_2^\dagger \hat{a}_1), \quad (12)$$

$$\begin{aligned} \hat{H}_{SR} &= \lambda \sum_k \gamma_k (\hat{a}_1^\dagger + \hat{a}_1)(\hat{e}_{1k}^\dagger + \hat{e}_{1k}) + \\ &+ \lambda \sum_m \gamma_m (\hat{a}_2^\dagger + \hat{a}_2)(\hat{e}_{2m}^\dagger + \hat{e}_{2m}) = \lambda \hat{S}_1 \hat{R}_1 + \lambda \hat{S}_2 \hat{R}_2, \end{aligned} \quad (13)$$

$$\hat{H}_R = \sum_k \omega_{1k} \hat{e}_{1k}^\dagger \hat{e}_{1k} + \sum_m \omega_{2m} \hat{e}_{2m}^\dagger \hat{e}_{2m}. \quad (14)$$

Гамильтониан  $\hat{H}_S$  описывает систему двух взаимодействующих осцилляторов с константой связи  $\Omega$ . Гамильтониан  $\hat{H}_R$  описывает два резервуара гармонических осцилляторов с наборами частот  $\omega_{1k}$  и  $\omega_{2m}$ . Каждый из резервуаров взаимодействует только с одним из осцилляторов системы. Гамильтониан  $\hat{H}_{SR}$  описывает взаимодействие между системой и резервуарами,  $\gamma_{k,m}$  – соответствующие константы связи,  $\lambda$  – параметр взаимодействия.

Отметим, что  $\hat{H}_S$  диагонализуются преобразованием  $\hat{b} = (\hat{a}_1 + \hat{a}_2)/\sqrt{2}$ ,  $\hat{c} = (\hat{a}_1 - \hat{a}_2)/\sqrt{2}$ ,

$$\hat{H}_S = (\omega + \Omega)\hat{b}^\dagger \hat{b} + (\omega - \Omega)\hat{c}^\dagger \hat{c}, \quad (15)$$

которое сохраняет коммутационные соотношения  $[\hat{b}, \hat{b}^\dagger] = [\hat{c}, \hat{c}^\dagger] = 1$ ,  $[\hat{b}, \hat{c}^\dagger] = [\hat{c}, \hat{b}^\dagger] = 0$ .

Полагая  $\Omega \ll \omega$  и применяя описанную выше процедуру исключения переменных резервуара, получаем (см. доп. материалы)

$$\begin{aligned} \frac{\partial \hat{\rho}_S(t)}{\partial t} &= -((I)_t - (II)_t + (III)_t - (IV)_t) - \\ &- ((1) \rightarrow (2), \hat{c} \rightarrow -\hat{c}, \hat{c}^\dagger \rightarrow -\hat{c}^\dagger), \quad \text{где} \end{aligned} \quad (16)$$

$$\begin{aligned} (I)_t &= \frac{1}{2} \hat{\rho}_S \left( \hat{b}\hat{b}^\dagger G_{1-}(\omega + \Omega) + \hat{b}^\dagger \hat{b} G_{1-}(-(\omega + \Omega)) + \right. \\ &+ \hat{b}\hat{c}^\dagger G_{1-}(\omega + \Omega)e^{-i2\Omega t} + \hat{b}^\dagger \hat{c} G_{1-}(-(\omega + \Omega))e^{i2\Omega t} + \\ &+ \hat{c}\hat{b}^\dagger G_{1-}(\omega - \Omega)e^{i2\Omega t} + \hat{c}^\dagger \hat{b} G_{1-}(-(\omega - \Omega))e^{-i2\Omega t} + \\ &\left. + \hat{c}\hat{c}^\dagger G_{1-}(\omega - \Omega) + \hat{c}^\dagger \hat{c} G_{1-}(-(\omega - \Omega)) \right), \quad (17) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} (II)_t &= \frac{1}{2} \left( \hat{b}\hat{\rho}_S \hat{b}^\dagger G_{1-}(-(\omega + \Omega)) + \hat{b}^\dagger \hat{\rho}_S \hat{b} G_{1-}(\omega + \Omega) + \right. \\ &+ \hat{b}\hat{\rho}_S \hat{c}^\dagger G_{1-}(-(\omega - \Omega))e^{-i2\Omega t} + \hat{b}^\dagger \hat{\rho}_S \hat{c} G_{1-}(\omega - \Omega)e^{i2\Omega t} + \\ &+ \hat{c}\hat{\rho}_S \hat{b}^\dagger G_{1-}(-(\omega + \Omega))e^{i2\Omega t} + \hat{c}^\dagger \hat{\rho}_S \hat{b} G_{1-}(\omega + \Omega)e^{-i2\Omega t} + \\ &\left. + \hat{c}\hat{\rho}_S \hat{c}^\dagger G_{1-}(-(\omega - \Omega)) + \hat{c}^\dagger \hat{\rho}_S \hat{c} G_{1-}(\omega - \Omega) \right), \quad (18) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} (III)_t &= \frac{1}{2} \left( \hat{b}\hat{b}^\dagger G_{1+}(\omega + \Omega) + \hat{b}^\dagger \hat{b} G_{1+}(-(\omega + \Omega)) + \right. \\ &+ \hat{b}\hat{c}^\dagger G_{1+}(\omega - \Omega)e^{-i2\Omega t} + \hat{b}^\dagger \hat{c} G_{1+}(-(\omega - \Omega))e^{i2\Omega t} + \\ &+ \hat{c}\hat{b}^\dagger G_{1+}(\omega + \Omega)e^{i2\Omega t} + \hat{c}^\dagger \hat{b} G_{1+}(-(\omega + \Omega))e^{-i2\Omega t} + \\ &\left. + \hat{c}\hat{c}^\dagger G_{1+}(\omega - \Omega) + \hat{c}^\dagger \hat{c} G_{1+}(-(\omega - \Omega)) \right) \hat{\rho}_S, \quad (19) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} (IV)_t &= \frac{1}{2} \left( \hat{b}\hat{\rho}_S \hat{b}^\dagger G_{1+}(-(\omega + \Omega)) + \hat{b}^\dagger \hat{\rho}_S \hat{b} G_{1+}(\omega + \Omega) + \right. \\ &+ \hat{b}\hat{\rho}_S \hat{c}^\dagger G_{1+}(-(\omega + \Omega))e^{-i2\Omega t} + \hat{b}^\dagger \hat{\rho}_S \hat{c} G_{1+}(\omega + \Omega)e^{i2\Omega t} + \\ &+ \hat{c}\hat{\rho}_S \hat{b}^\dagger G_{1+}(-(\omega - \Omega))e^{i2\Omega t} + \hat{c}^\dagger \hat{\rho}_S \hat{b} G_{1+}(\omega - \Omega)e^{-i2\Omega t} + \\ &\left. + \hat{c}\hat{\rho}_S \hat{c}^\dagger G_{1+}(-(\omega - \Omega)) + \hat{c}^\dagger \hat{\rho}_S \hat{c} G_{1+}(\omega - \Omega) \right). \quad (20) \end{aligned}$$

Выражение ((1) → (2),  $\hat{c} \rightarrow -\hat{c}$ ,  $\hat{c}^\dagger \rightarrow -\hat{c}^\dagger$ ) во второй строке (16) означает, что нужно записать выражение ((I)<sub>t</sub> – (II)<sub>t</sub> + (III)<sub>t</sub> – (IV)<sub>t</sub>) с соответствующими заменами индексов и операторов. Коэффициенты  $G_{1,2\pm}(\omega)$  – односторонние фурье-образы корреляционных функций резервуаров  $TR_{R_1}(\tau)$  и  $TR_{R_2}(\tau)$  (см. доп. материалы).

**3. Уравнения на заселенности мод.** Из уравнения (16) можно получить уравнения на средние значения операторов  $\hat{b}^\dagger \hat{b}$ ,  $\hat{c}^\dagger \hat{c}$ ,  $\hat{b}^\dagger \hat{c}$ ,  $\hat{c}^\dagger \hat{b}$ . Они имеют вид (см. доп. материалы):

$$\frac{\partial \langle \hat{b}^\dagger \hat{b} \rangle}{\partial t} = \lambda^2 \left( \frac{G_1(\omega + \Omega) + G_2(\omega + \Omega)}{2} + 2A \langle \hat{b}^\dagger \hat{b} \rangle + (B + C) \langle \hat{b}^\dagger \hat{c} \rangle + (\tilde{B} - \tilde{C}) \langle \hat{c}^\dagger \hat{b} \rangle \right), \quad (21)$$

$$\frac{\partial \langle \hat{c}^\dagger \hat{c} \rangle}{\partial t} = \lambda^2 \left( \frac{G_1(\omega - \Omega) + G_2(\omega - \Omega)}{2} + 2\tilde{A} \langle \hat{c}^\dagger \hat{c} \rangle + (B - C) \langle \hat{b}^\dagger \hat{c} \rangle + (\tilde{B} + \tilde{C}) \langle \hat{c}^\dagger \hat{b} \rangle \right), \quad (22)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial \langle \hat{b}^\dagger \hat{c} \rangle}{\partial t} = & i2\Omega \langle \hat{b}^\dagger \hat{c} \rangle + \lambda^2 \left( \frac{G_{1-}(\omega + \Omega) + G_{1+}(\omega - \Omega)}{2} - \right. \\ & \left. - \frac{G_{2-}(\omega + \Omega) + G_{2+}(\omega - \Omega)}{2} + (\tilde{B} + \tilde{C}) \langle \hat{b}^\dagger \hat{b} \rangle + \right. \\ & \left. + (\tilde{B} - \tilde{C}) \langle \hat{c}^\dagger \hat{c} \rangle + (A + \tilde{A}) \langle \hat{b}^\dagger \hat{c} \rangle \right), \quad (23) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial \langle \hat{c}^\dagger \hat{b} \rangle}{\partial t} = & -i2\Omega \langle \hat{c}^\dagger \hat{b} \rangle + \lambda^2 \left( \frac{G_{1-}(\omega - \Omega) + G_{1+}(\omega + \Omega)}{2} - \right. \\ & \left. - \frac{G_{2-}(\omega - \Omega) + G_{2+}(\omega + \Omega)}{2} + (B - C) \langle \hat{b}^\dagger \hat{b} \rangle + \right. \\ & \left. + (B + C) \langle \hat{c}^\dagger \hat{c} \rangle + (A + \tilde{A}) \langle \hat{c}^\dagger \hat{b} \rangle \right), \quad (24) \end{aligned}$$

где константы  $A$  и  $\tilde{A}$  зависят от полных фурье-образов и определяют вклад супероператоров Линдблада в релаксацию, а константы  $B$  и  $\tilde{B}$ ,  $C$  и  $\tilde{C}$  зависят от односторонних фурье-образов и определяют вклад релаксационных операторов вида  $2\hat{F}_1 \hat{\rho}_S \hat{F}_2 - \hat{\rho}_S \hat{F}_2 \hat{F}_1 - \hat{F}_2 \hat{F}_1 \hat{\rho}_S$  с  $\hat{F}_1 \neq \hat{F}_2$ .

Основное отличие полученных уравнений от аналогичных уравнений глобального подхода состоит в том, что в правой части присутствует связь между собственными модами. В свою очередь, в глобальном подходе этой связи нет, и система представляет собой четыре независимых уравнения (см. доп. материалы).

Результаты моделирования уравнений (21)–(24) представлены на рис. 1–5. На рисунках 1–3 представлены зависимости стационарных средних значений обозначенных операторов от  $\Omega$ , вычисленные в различных подходах: разработанный, глобальный и локальный. На рисунках 4 и 5 показана динамика релаксации системы в различных подходах. В качестве функций фурье-образов были взяты [12]:

$$G_j(\tilde{\omega}) = \begin{cases} \gamma_j(|\tilde{\omega}|) n_j(|\tilde{\omega}|), & \text{при } \tilde{\omega} > 0, \\ \gamma_j(|\tilde{\omega}|) (n_j(|\tilde{\omega}|) + 1), & \text{при } \tilde{\omega} < 0, \end{cases} \quad (25)$$

где  $j = 1, 2$  – номер резервуара,  $\gamma_j(\tilde{\omega}) = q_j \tilde{\omega}^3$ ,  $q_j$  – константы, а  $n_j(\tilde{\omega}) = 1/(\exp(\tilde{\omega}/T_j) - 1)$  – числа заполнения.

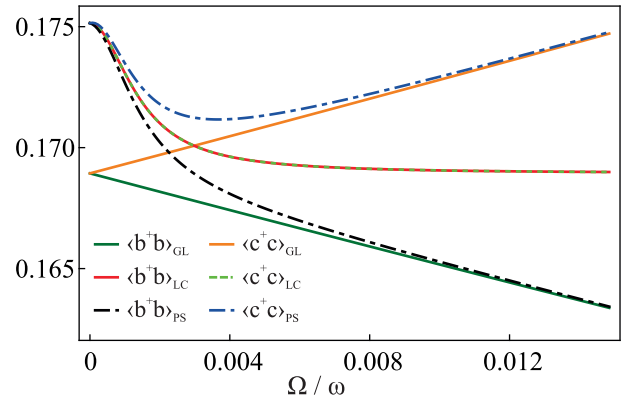


Рис. 1. (Цветной онлайн) Средние числа заполнения симметричной,  $\langle \hat{b}^\dagger \hat{b} \rangle$ , антисимметричной  $\langle \hat{c}^\dagger \hat{c} \rangle$  мод, вычисленные в различных подходах.  $T_1 = 0.55\omega$ ,  $T_2 = 0.5\omega$ ,  $q_1 = 1\omega^{-2}$ ,  $q_2 = 2\omega^{-2}$ ,  $\lambda^2 = 0.001$ . GL – глобальный подход, LC – локальный подход, PS – частично секулярный подход

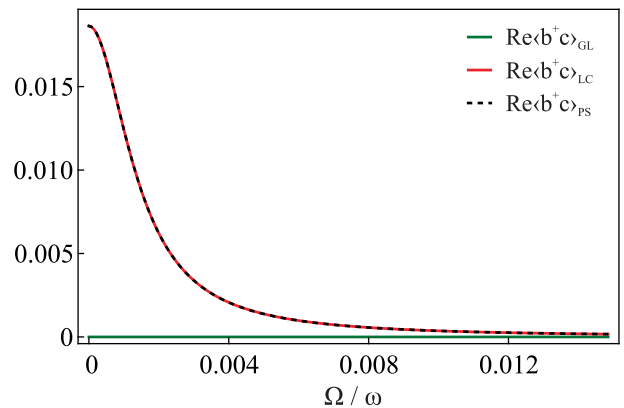


Рис. 2. (Цветной онлайн) Действительная часть величины  $\langle \hat{b}^\dagger \hat{c} \rangle$ , вычисленная в различных подходах. Параметры те же, что и на рис. 1

На рисунке 1 изображены средние числа заполнения симметричной и антисимметричной мод. Видно, что между локальным и глобальным подходами наблюдаются различия в пределе малых и больших  $\Omega$ . Разработанный подход до определенной константы связи совпадает с локальным подходом, а после нее асимптотически стремится к глобальному. Это связано с тем, что при малых константах связи для фурье-образов корреляционных функций резервуара имеем  $G_{\pm}(\omega \pm \Omega) \approx G_{\pm}(\omega)$  и система уравнений (21)–(24) переходит в систему уравнений локального подхода (см. дополнительный материал). При большой константе связи имеем  $B, C \sim \gamma_1, \gamma_2 \ll \Omega$  (для выполнения этого условия необходимо, чтобы плотность состояний резервуаров имела не слишком большую производную в точке  $\omega$ ), т.е. потоки энергии между осцилляторами главным образом определяются константой связи  $\Omega$ . В этом случае уравнения разработанного и глобального подходов начинают совпадать.

На рисунке 2 изображена действительная часть среднего значения оператора  $\langle \hat{b}^\dagger \hat{c} \rangle$ , которая имеет смысл энергии взаимодействия симметричной и антисимметричной мод. Отметим, что этой энергии взаимодействия не было в исходном гамильтониане системы, она возникла за счет взаимодействия с резервуарами. В локальном и разработанном подходах эти энергии взаимодействия совпадают и являются отличными от нуля, в то время как в глобальном подходе энергия взаимодействия между симметричной и антисимметричной модами тождественно равна нулю, если в начальный момент времени она равна нулю.

Из рисунка 3 видно, что мнимые части  $\langle \hat{b}^\dagger \hat{c} \rangle$  ведут себя сходным образом: локальный подход совпадает с разработанным, а глобальный подход дает тождественный нуль, если в начальный момент времени  $\langle \hat{b}^\dagger \hat{c} \rangle = 0$ .

На рисунках 4 и 5 показана динамика энергии осцилляторов и потока энергии между осцилляторами при  $\Omega = 0.04$ . Данное значение константы связи выбрано для того, чтобы сделать отличия подходов в динамике более выраженными. Разработанный и локальный подходы выявляют осцилляции в средних заселенностях осцилляторов, которые появляются из-за разницы скоростей затухания в различные резервуары. Глобальный подход данных осцилляций не выявляет и дает экспоненциальный закон падения заселенностей осцилляторов. Стоит отметить, что локальный подход переоценивает заселенности осцилляторов. Также из рис. 5 видно, что действительные части интерференционных слагаемых осцилляторов разработанного и глобального подходов совпа-

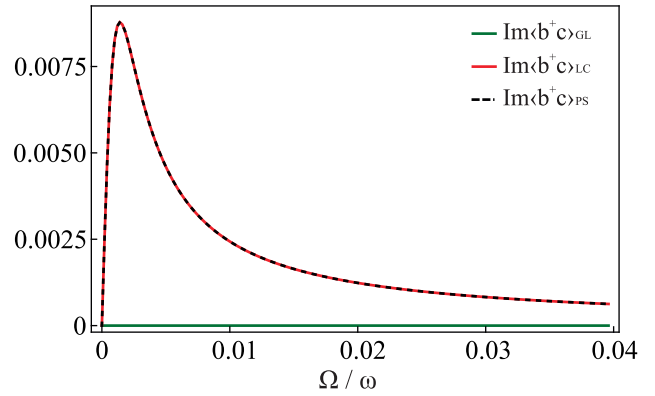


Рис. 3. (Цветной онлайн) Мнимая часть величины  $\langle \hat{b}^\dagger \hat{c} \rangle$ , вычисленная в различных подходах. Параметры те же, что и на рис. 1

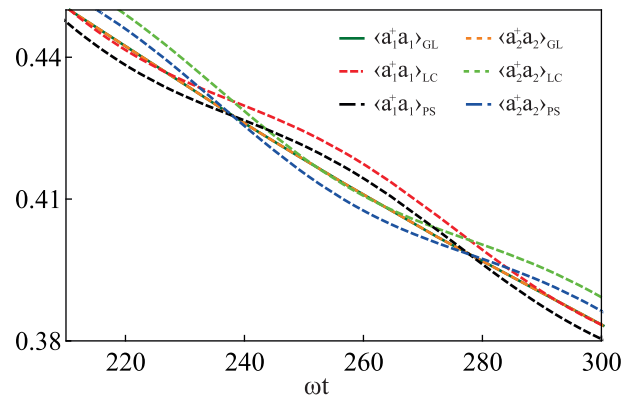


Рис. 4. (Цветной онлайн) Динамика чисел заполнения осцилляторов,  $\langle \hat{a}_1^\dagger \hat{a}_1 \rangle$  и  $\langle \hat{a}_2^\dagger \hat{a}_2 \rangle$ . Параметры те же, что и на рис. 1 и  $\Omega = 0.04$

дают. Однако в локальном подходе действительная часть этих интерференционных слагаемых затухает экспоненциально (см. доп. материалы). Мнимые ча-

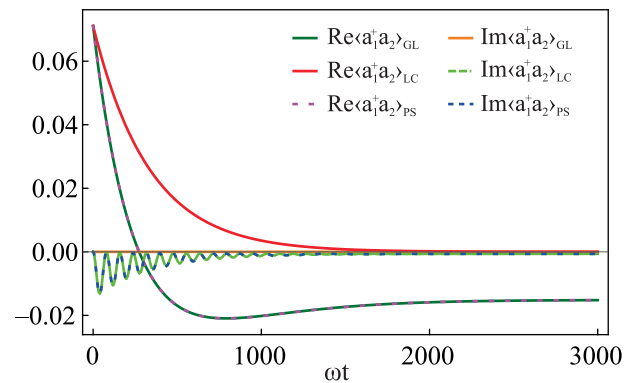


Рис. 5. (Цветной онлайн) Динамика величины  $\langle \hat{a}_1^\dagger \hat{a}_2 \rangle$ , вычисленная в различных подходах. Параметры те же, что и на рис. 4

сти интерференционных слагаемых ведут себя прямо противоположно, а именно, они отличны от нуля и совпадают для разработанного и локального подходов, а глобальный подход дает тождественный ноль, если в начальный момент времени мнимая часть интерференционного слагаемого равна нулю.

**Выводы.** В настоящей работе разработана модель релаксации взаимодействующих систем, которая применима при произвольном соотношении между скоростью релаксации и константами связи между подсистемами. Таким образом, она может способствовать лучшему пониманию динамики системы вблизи особой точки. Более того, разработанная модель описывает осцилляции средних чисел заполнения осцилляторов, которые имеют место в эксперименте и воспроизводятся в локальном подходе. В пределе малых констант связи разработанная модель асимптотически совпадает с локальным подходом, а при большой константе связи она воспроизводит результаты глобального подхода, если плотность состояний имеет не слишком большую производную.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского научного фонда, грант # 20-72-10057.

Е. С. Андрианов и А. А. Зябловский благодарит фонд развития теоретической физики и математики “Базис”.

1. Ph. Tamarat, A. Maali, B. Lounis, and M. Orrit, *J. Phys. Chem. A* **104**, 1 (2000).
2. W. E. Moerner, *J. Phys. Chem. B* **106**, 910 (2002).
3. J. A. Dieringer, R. B. Lettan, K. A. Scheidt, and R. P. van Duyne, *J. Am. Chem. Soc.* **129**, 16249 (2007).
4. N. Tallarida, L. Rios, V. A. Apkarian, and J. Lee, *Nano Lett.* **15**, 6386 (2015).
5. D. Cialla, A. März, R. Böhme, F. Theil, K. Weber, M. Schmitt, and J. Popp, *Anal. Bioanal. Chem.* **403**, 27 (2012).
6. F. Benz, M. K. Schmidt, A. Dreismann, R. Chikkaraddy, Y. Zhang, A. Demetriadou, C. Carnegie, H. Ohadi, B. De Nijs, R. Esteban, J. Aizpurua, and J. J. Baumberg, *Science* **354**, 726 (2016).
7. A. Lombardi, M. K. Schmidt, L. Weller, W. M. Deacon, F. Benz, B. de Nijs, J. Aizpurua, and J. J. Baumberg, *Phys. Rev. X* **8**, 011016 (2018).
8. Y. Zhang, C. Min, X. Dou, X. Wang, H. P. Urbach, M. G. Somekh, and X. Yuan, *Light Sci. Appl.* **10**, 1 (2021).
9. T. Shoji and Y. Tsuboi, *J. Phys. Chem. Lett.* **5**, 2957 (2014).
10. Y. Zhao, A. A. E. Saleh, and J. A. Dionne, *Acs Photonics* **3**, 304 (2016).
11. H.-P. Breuer and F. Petruccione, *The theory of open quantum systems*, Oxford University Press, N.Y. (2002).
12. V. Yu. Shishkov, E. S. Andrianov, A. A. Pukhov, A. P. Vinogradov, and A. A. Lisyansky, *Phys.-Uspekhi* **62**, 510 (2019).
13. A. Rivas and S. F. Huelga, *Open quantum systems*, Springer, Berlin (2012).
14. V. May and O. Kühn, *Charge and energy transfer dynamics in molecular systems*, John Wiley & Sons, Mörlenbach (2008).
15. E. Mozgunov and D. Lidar, *Quantum* **4**, 227 (2020).
16. F. Nathan and M. S. Rudner, *Phys. Rev. B* **102**, 115109 (2020).
17. E. B. Davies, *Commun. Math. Phys.* **39**, 91 (1974).
18. V. Gorini, A. Kossakowski, and E. C. G. Sudarshan, *J. Math. Phys.* **17**, 821 (1976).
19. G. Lindblad, *Commun. Math. Phys.* **48**, 119 (1976).
20. V. Yu. Shishkov, E. S. Andrianov, A. A. Pukhov, A. P. Vinogradov, and A. A. Lisyansky, *Phys. Rev. E* **98**, 022132 (2018).
21. H. Spohn and J. L. Lebowitz, *Adv. Chem. Phys.* **38**, 109 (1978).
22. R. Kosloff, *Entropy* **15**, 2100 (2013).
23. J. O. González, L. A. Correa, G. Nocerino, J. P. Palao, D. Alonso, and G. Adesso, *Open Syst. Inf. Dyn.* **24**, 1740010 (2017).
24. A. Rivas, A. D. K. Plato, S. F. Huelga, and M. B. Plenio, *New J. Phys.* **12**, 113032 (2010).
25. M. Cattaneo, G. L. Giorgi, S. Maniscalco, and R. Zambrini, *New J. Phys.* **21**, 113045 (2019).
26. A. S. Trushechkin and I. V. Volovich, *Europhysics Letters* **113**, 30005 (2016).
27. M.-A. Miri and A. Alu, *Science* **363**, (2019).
28. J. Wiersig, *Phys. Rev. A* **93**, 033809 (2016).
29. W. Chen, Ş. K. Özdemir, G. Zhao, J. Wiersig, and L. Yang, *Nature* **548**, 192 (2017).
30. A. A. Zyablovsky, E. S. Andrianov, and A. A. Pukhov, *Sci. Rep.* **6**, 1 (2016).
31. I. V. Doronin, A. A. Zyablovsky, E. S. Andrianov, A. A. Pukhov, and A. P. Vinogradov, *Phys. Rev. A* **100**, 021801 (2019).
32. I. V. Doronin, A. A. Zyablovsky, and E. S. Andrianov, *Opt. Express* **29**, 5624 (2021).
33. N. Nefedkin, E. Andrianov, and A. Vinogradov, *J. Phys. Chem. C* **124**, 18234 (2020).
34. B. Munkhbat, M. Wersäll, D. Baranov, T. J. Antosiewicz, and T. Shegai, *Sci. Adv.* **4** eaas9552 (2018).
35. W. D. Heiss, *Journal of Physics A: Mathematical and Theoretical* **45**, 444016 (2012).
36. F. Minganti, A. Miranowicz, R. W. Chhajlany, and F. Nori, *Phys. Rev. A* **100**, 062131 (2019).
37. L. D. Landau and E. M. Lifshitz, *Course of theoretical physics. V. 5: Statistical Physics, part 1*, Elsevier, Exeter (2013).
38. H. J. Carmichael, *Statistical methods in quantum optics 1: master equations and Fokker-Planck equations*, Springer, Berlin (1999).