

УДК 535.373.2

**РЕЗОНАНСНОЕ ПРЕОБРАЗОВАНИЕ МОЛЕКУЛАМИ  
ПОЛИХРОМАТИЧЕСКОГО ИЗЛУЧЕНИЯ,  
ИМЕЮЩЕГО ВИД ПЕРИОДИЧЕСКОЙ ПОСЛЕДОВАТЕЛЬНОСТИ  
ИМПУЛЬСОВ. СПЕКТРАЛЬНЫЕ И СПЕКТРАЛЬНО-ВРЕМЕННЫЕ  
ХАРАКТЕРИСТИКИ ВТОРИЧНОГО ИЗЛУЧЕНИЯ**

B. A. Морозов и П. П. Шорыгин

Даны спектрально-временные характеристики вторичного излучения в рамках классической теории преобразования света гармоническим осциллятором при нестационарном режиме облучения и проведено сравнение с этими характеристиками в полуклассической и квантовой теориях. Обсуждаются особенности вторичного излучения при преобразовании молекулами би- и трихроматического излучения.

Введение

В первой части [1] рассмотрена зависимость от времени интенсивности вторичного излучения при преобразовании молекулой би- и полихроматического излучения, и отмечены некоторые закономерности в изменении формы огибающей интенсивности вторичного излучения по сравнению с интенсивностью облучения, а также гашение флуоресценции при определенных условиях возбуждения вблизи или в области резонанса. В настоящем сообщении изучение этих случаев преобразования света будет дополнено описанием спектрально-временных и спектральных характеристик вторичного излучения.

Общие выражения для зависящих от времени спектров  
вторичного излучения по классической теории

Будем исходить из общей формулы (5), приведенной в [1], для интенсивности вторичного излучения одномерным осциллятором (смещающимся по оси  $x$  декартовой системы координат под действием поля облучения, направленного по оси  $z$ ) в единичный телесный угол в направлении оси  $y$

$$I(t) = \frac{e^2 \omega^4}{2\pi c^3} |b(t)|^2, \quad (1)$$

где  $b(t)$  — зависящая от времени комплексная амплитуда наведенных колебаний осциллятора, определяемая в [1],  $e$  — эффективный заряд,  $\omega$  — «средняя» частота возбуждающего света.

Используя выражение (1), а также формулу (4) из [1] обычным способом [2] получаем выражение для спектральной плотности вторичного излучения

$$J(\omega') = \frac{e^2 \omega^4}{4\pi^2 c^3} |B(\omega' - \omega)|^2, \quad (2)$$

где  $B(\omega' - \omega) = \int_0^\infty b(t) \exp[i(\omega' - \omega)t] dt$ . В (2) и далее подразумевается, что вся энергия вторичного излучения отнесена к положительным частотам (т. е.  $\omega' \geq 0$ ). Для краткости функцию  $J(\omega')$  будем называть спектром вторичного излучения (соответствующим измерениям в интервале времени от 0 до  $\infty$ ).

Следуя общим идеям [3, 4], определим текущий спектр вторичного излучения следующим образом:

$$\tilde{J}(\omega', t) = \frac{e^2 \omega^4}{4\pi^2 c^3} |\tilde{b}(\omega' - \omega, t)|^2, \quad (3)$$

где  $\tilde{b}(\omega' - \omega, t) = \int_0^t b(\tau) \exp[i(\omega' - \omega)\tau] d\tau$ . Тогда выражение для переходного спектра будет иметь вид

$$\tilde{I}(\omega', t) = \frac{\partial}{\partial t} \tilde{J}(\omega', t). \quad (4)$$

Нетрудно убедиться в том, что

$$\int_0^\infty \tilde{I}(\omega', t) d\omega' = I(t). \quad (5)$$

При  $t \rightarrow \infty$  текущий спектр  $\tilde{J}(\omega', t)$  переходит в спектр  $J(\omega')$ .

Итак, для того, чтобы найти спектр и спектрально-временные характеристики вторичного излучения, надо определить величины  $B(\omega' - \omega)$  и  $\tilde{b}(\omega' - \omega, t)$  и воспользоваться формулами (2)–(4). Однако, прежде чем перейти к конкретным случаям облучения, сравним эти общие выражения классической теории с соответствующими выражениями полуклассической и квантовой теории.

### Сравнение с полуклассической и квантовой теориями

В полуклассической теории выражение для интенсивности вторичного излучения двухуровневой системой, соответствующее выражению (1), имеет вид

$$I(t) = 2\gamma_y \hbar \omega_{10} |b_1(t)|^2, \quad (6)$$

где  $\gamma_y = \omega_{10}^3 d_{10}^2 / 4\pi \hbar c^3$  определяет скорость потери энергии молекулами в состоянии 1 в виде излучения в пределах единичного телесного угла в направлении оси  $y$ , перпендикулярном направлению дипольного момента системы  $d = ex$ ;  $\omega_{10} \equiv \hbar^{-1}(E_1 - E_0)$  — частота электронного перехода молекулы,  $b_1(t)$  — амплитуда вероятности найти молекулу в возбужденном состоянии 1, которая определяется уравнением Шредингера в представлении взаимодействия

$$i\hbar \dot{b}_n(t) = \sum_m b_m(t) V_{nm} e^{i\omega_{nm} t}; \quad n, m = 0, 1. \quad (7)$$

Здесь  $V$  — оператор энергии взаимодействия поля излучения  $\mathcal{E}(t)$ , рассматриваемого классически, с молекулой, рассматриваемой с точки зрения квантовой теории. Если  $V = -d\mathcal{E}(t)$ , где  $\mathcal{E}(t) = 2\mathcal{E}_0(t) \cos \omega t$ , тогда по теории возмущений при  $|b_1(t)|^2 \ll 1$  имеем

$$b_1(t) = i\hbar^{-1} e x_{10} e^{-i\Delta t} \int_0^t e^{(i\Delta + \gamma)\tau} \mathcal{E}_0(\tau) d\tau. \quad (8)$$

Сравнение  $b_1(t)$  с амплитудой  $b(t)$  классической теории в [1] показывает, что выражение для интенсивности вторичного излучения по классической теории переходит в выражение полуклассической теории при замене  $b(t)$  на  $b_1(t) x_{10} \times \exp(i\Delta t)$ , где  $x_{10}$  — матричный элемент координаты электрона.

Для текущего спектра вторичного излучения в полуклассической теории, исходя из формулы (6), получаем, аналогично переходу от (1) к (3), следующее выражение:

$$\tilde{J}(\omega', t) = \pi^{-1} \gamma_y \hbar \omega_{10} |\tilde{b}_1(\omega' - \omega_{10}, t)|^2, \quad (9)$$

которое с учетом (8) может быть записано в виде

$$\tilde{J}(\omega', t) = \frac{\omega^4}{4\pi^2\hbar^2c^3} \int_0^t \int_0^t dt_1 dt'_1 \int_0^{t_1} dt_2 \int_0^{t'_1} dt'_2 C(t_1, t_2, t'_1, t'_2) S(t_2, t'_2). \quad (10)$$

Четырехвременная функция Грина для молекулы  $C(t_1, t_2, t'_1, t'_2)$  в данном случае имеет вид

$$C(t_1, t_2, t'_1, t'_2) = e^4 x_{10}^4 \exp[-i(E_1 - i\gamma)(t_1 - t_2 - t'_1 + t'_2)], \quad (11)$$

а корреляционная функция возбуждающего поля при использовании «приближения вращающейся волны» имеет вид

$$S(t_2, t'_2) = \mathcal{E}_0(t_2) \mathcal{E}_0^*(t'_2) \exp[-i\omega(t_2 - t'_2)]. \quad (12)$$

Выражение (10) использовалось в качестве исходного при изучении текущих спектров вторичного излучения, например, в работе [5].

Текущий спектр вторичного излучения по квантовой теории определяется распределением вероятности найти в поле вторичные фотоны  $\hbar\omega_\sigma$ , появившиеся за время от 0 до  $t$ , и молекулу в основном состоянии, т. е. величиной  $|b_{\sigma 0}(t)|^2$ . Амплитуда  $b_{\sigma 0}(t)$  подчиняется уравнению (7); при этом под  $n$  и  $t$  следует понимать наборы квантовых чисел молекулы и поля, а оператор  $V$  полагать оператором энергии взаимодействия квантованного электромагнитного поля с молекулой. Точное выражение для текущего спектра как энергии поля излучения, приходящейся на единичный интервал частоты вокруг каждого значения  $\omega_\sigma$  к моменту  $t$ , таково

$$\tilde{J}(\omega_\sigma, t) = \hbar\omega_\sigma \rho_{\omega_\sigma} |b_{\sigma 0}(t)|^2, \quad (13)$$

где  $\rho_{\omega_\sigma}$  — плотность осцилляторов поля излучения.

Отметим прежде всего, что в силу уравнения Шрёдингера (7) имеем

$$b_{\sigma 0}(t) = (i\hbar)^{-1} V_{\sigma 0}^{01} \int_0^t b_{01}(\tau) e^{i(\omega_\sigma - \omega_{10})\tau} d\tau \equiv (i\hbar)^{-1} V_{\sigma 0}^{01} \tilde{b}_{01}(\omega_\sigma - \omega_{10}, t), \quad (14)$$

так что с учетом равенства  $|V_{\sigma 0}^{01}|^2 = 2\pi\hbar\omega_\sigma d_\sigma^2$  по квантовой теории получаем

$$\tilde{J}(\omega_\sigma, t) = \frac{\omega_\sigma^4 d_\sigma^2}{4\pi^2 c^3} |\tilde{b}_{01}(\omega_\sigma - \omega_{10}, t)|^2 = \pi^{-1} \gamma_\sigma \hbar\omega_\sigma |\tilde{b}_{01}(\omega_\sigma - \omega_{10}, t)|^2. \quad (15)$$

Выражение для текущего спектра (15) отличается от соответствующего выражения полуклассической теории (9) только тем, что вместо  $\tilde{b}_1(\omega' - \omega_{10}, t)$  стоит  $\tilde{b}_{01}(\omega_\sigma - \omega_{10}, t)$ . Напомним, что  $b_{01}(t)$  — амплитуда вероятности найти к моменту времени  $t$  молекулу в возбужденном состоянии 1, а поле — в состоянии с энергией, меньшей на  $\hbar\omega$  по сравнению с энергией начального состояния. Если импульс облучения описывать пакетом однофотонных состояний со средней энергией  $\hbar\omega$ , то можно показать, что  $b_{01}(t) = b_1(t)$  [6].

Итак, при принятых выше допущениях классическая, полуклассическая и квантовая теории приводят к одинаковым (с точностью до постоянных множителей) выражениям для зависящих от времени спектров вторичного излучения.

### Преобразование бихроматического поля

Комплексная амплитуда  $b(t)$  колебаний молекулярного электронного осциллятора при облучении полями  $\mathcal{E}_2^+(t) = \mathcal{E}_0 [\cos(\omega - \Omega)t + \cos(\omega + \Omega)t]$  и  $\mathcal{E}_2^-(t) = \mathcal{E}_0 [\cos(\omega - \Omega)t - \cos(\omega + \Omega)t]$ , действующими в интервале времени от нуля до  $T$ , определена в [1]. Соответствующее выражение для  $b^\pm(\omega' - \omega_1 t)$  имеет вид

$$\tilde{b}^\pm = -\frac{ie\mathcal{E}_0}{4m\omega_0} [\Phi(-\Omega) \pm \Phi(+\Omega)], \quad (16)$$

где при  $t \leq T$  для каждой из спектральных компонент падающего света  $\omega - \Omega$  и  $\omega + \Omega$

$$\Phi(\pm\Omega) = \frac{1}{\Delta \mp \Omega - i\gamma} \left[ \frac{e^{i(\omega' - \omega \mp \Omega)t} - 1}{\omega' - \omega \mp \Omega} + \frac{e^{-i(\omega_0 - \omega')t - \gamma t} - 1}{\omega_0 - \omega' - i\gamma} \right] \equiv \Phi_1(\pm\Omega) + \Phi_2(\pm\Omega), \quad (17)$$

а при  $t \geq T$

$$\Phi(\pm\Omega) = \frac{1}{\Delta \mp \Omega - i\gamma} \left[ \frac{e^{i(\omega' - \omega \mp \Omega)t} - 1}{\omega' - \omega \mp \Omega} \frac{\Delta \mp \Omega - i\gamma}{\omega_0 - \omega' - i\gamma} - \frac{e^{i(\Delta \mp \Omega)t + \gamma T} - 1}{\omega_0 - \omega' - i\gamma} e^{-i(\omega_0 - \omega')t - \gamma t} \right]. \quad (18)$$

Слагаемые в формуле для  $\tilde{b}^\pm$  (16) происходят от преобразования компонент поля облучения  $\omega - \Omega$  и  $\omega + \Omega$ , включаемых на время от 0 до  $T$ .

Таким образом, квадратичная функция  $|b^\pm(\omega' - \omega, t)|^2$ , определяющая текущий спектр вторичного излучения молекулой при бихроматическом облучении, может быть представлена в виде суммы функций, соответствующих тем случаям, когда молекула возбуждается прямоугольными импульсами, заполненными отдельными составляющими бихроматического поля, и интерференциального члена.

В связи с этим целесообразно отметить основные черты спектрально-временных характеристик вторичного излучения при облучении импульсом прямоугольной формы, заполненным колебаниями одной частоты  $\omega$ . В начальные моменты времени ( $t \ll \gamma^{-1}$ ) энергия вторичного излучения распределена в широком интервале частот, включающем область частоты  $\omega$  и область собственной частоты  $\omega_0$ . Поскольку облучение прерывается в момент  $t = T$ , то все вторичное излучение в дальнейшем относится к области собственной частоты  $\omega_0$ , а его интенсивность  $I(t > T)$  уменьшается от значения, определяемого заселенностью возбужденного состояния молекулы  $|b_1(t = T)|^2$ , по экспоненциальному закону, т. е. оно является флуоресценцией. Если облучение не прерывается, то после  $t > \gamma^{-1}$  функция  $|\Phi_1(\pm\Omega)|^2$ , характеризующая интенсивность рассеяния, в отличие от  $|\Phi_2(\pm\Omega)|^2$ , характеризующей интенсивность флуоресценции, продолжает нарастать. Для  $t \gg \gamma^{-1}$  величиной  $\Phi_2(\pm\Omega)$  можно пренебречь по сравнению с  $\Phi_1(\pm\Omega)$ , так что имеет место стационарный режим преобразования излучения и величина  $|\Phi_1(\pm\Omega)|^2$  пропорциональна  $t$ . При этом подавляющая часть энергии вторичного излучения будет сосредоточена в области частоты  $\omega$  со спектральной шириной порядка  $t^{-1}$  (рассеяние).

При количественных оценках полезно нормировать энергию импульса облучения, проходящего через  $1 \text{ см}^2$ , на один квант  $\hbar\omega$ , выбирая амплитуду поля равной  $\sqrt{2\pi\hbar\omega/cT}$ . Тогда при стационарном режиме преобразования имеем по (17) для текущего спектра рассеяния

$$\tilde{J}(\omega', t) \sim \frac{t}{T} \frac{1}{\Delta^2 + \gamma^2} \delta(\omega' - \omega). \quad (19)$$

Через достаточно большое время после окончания действия импульса ( $t \rightarrow \infty$ ) по (18) имеем для спектра вторичного излучения

$$J(\omega') \sim \frac{1}{T} \frac{\sin^2(\omega' - \omega)T/2}{(\omega' - \omega)^2} \frac{1}{(\omega' - \omega_0)^2 + \gamma^2}. \quad (20)$$

Вторичное излучение при  $T \ll \gamma^{-1}$  в основном представляет собой флуоресценцию, распределенную по лоренцеву контуру с шириной  $\gamma$  вокруг  $\omega_0$ , а при  $T \gg \gamma^{-1}$  — рассеяние, сосредоточенное вокруг частоты  $\omega$  в пределах ширины  $T^{-1}$ .

Для сравнения с последующими результатами на рис. 1 схематически приведен текущий спектр вторичного излучения при облучении молекулы прямоугольным импульсом, заполненным колебаниями с частотой  $\omega$  для случая  $\omega_0 - \omega = 100\gamma$ . По оси абсцисс отложена частота  $\omega'$ , а по оси ординат — величина  $\tilde{J}(\omega', t)$  для некоторых значений  $t$  по (3), (17). Цифры над кривыми в единицах  $10^{-5} (16\pi)^{-1} (e^2/mc^2)^2 (\omega/\gamma^2)^2 I_0$  соответствуют значениям  $\tilde{J}(\omega' = \omega, t)$  и  $\tilde{J}(\omega' = \omega_0, t)$ . Масштаб по оси ординат для разных значений  $t$  из соображений удобства выбран различным.

Текущий спектр вторичного излучения молекулой, облучаемой бихроматическим полем, может значительно отличаться от суммы спектров, соответствующих действию на молекулу двух отдельных прямоугольных импульсов, за счет интерференционного члена. При этом результат будет различным для полей облучения  $\mathcal{E}_2^+(t)$  и  $\mathcal{E}_2^-(t)$ . Например, в случае облучения полем  $\mathcal{E}_2^-(t)$  при достаточном удалении от резонанса ( $|\Delta| \gg \Omega \gg \gamma$ ) в выражении для  $\tilde{\delta}^-(\omega' - \omega, t)$ , как следует из (16)–(18), за счет различия знаков будут уничтожаться члены  $\Phi_2(\pm \Omega)$ , отражающие возбуждение собственных колебаний двумя составляющими поля. Таким образом, в этом случае включение поля не приводит к возникновению флуоресценции. Как показано в [1], это обусловлено непрерывностью огибающей функции  $\mathcal{E}_2^-(t)$  при  $t=0$  и малостью вкладов от скачков производных при  $|\Delta| \gg \Omega \gg \gamma$ .

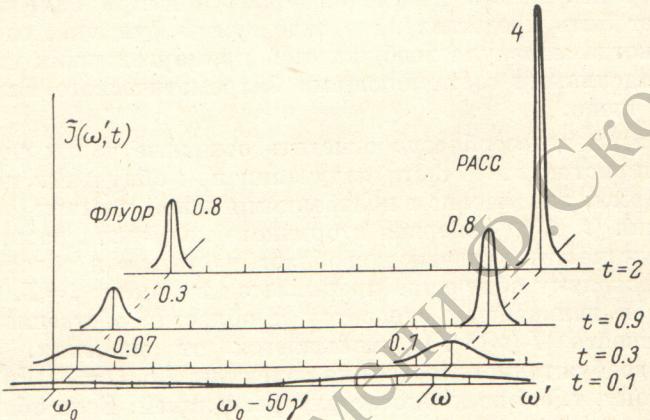


Рис. 1. Текущий спектр вторичного излучения при монохроматическом облучении, включаемом в  $t=0$ , для  $\Delta=10^2\gamma$ .

В других случаях облучения бигармоническим полем, как например полем  $\mathcal{E}_2^+(t)$ , при достаточном удалении от резонанса такого гашения не происходит и вторичное излучение включает флуоресценцию, появление которой в этом случае может рассматриваться также как следствие скачка функции  $\mathcal{E}_2^+(t)$  при  $t=0$ .

Обе компоненты бигармонического поля при  $|\Delta| \gg \Omega$  преобразуются примерно с одинаковой эффективностью, так что текущие спектры вторичного излучения почти симметричны относительно частоты  $\omega$ . При приближении к резонансу одна из компонент поля начинает преобразовываться более эффективно, и отмеченная симметрия нарушается. В точном резонансе с одной из компонент, например с  $\omega + \Omega$  (т. е. при  $\Delta = \Omega$ ), для  $\Omega \gg \gamma$ , используя (16) и (17), нетрудно показать, что при стационарном режиме преобразования света в текущем спектре интенсивность компоненты вторичного излучения с частотой  $\omega' = \omega + \Omega$  в  $(2\Omega/\gamma)^2$  раз больше, чем интенсивность компоненты с частотой  $\omega' = \omega - \Omega$ .

При облучении в строгом резонансе со средней частотой ( $\Delta=0$ ) обе компоненты бихроматического поля облучения преобразуются одинаково эффективно, так что текущие спектры вторичного излучения будут симметричны относительно частоты  $\omega_0$ . Если при этом  $\Omega \gg \gamma$ , то при преобразовании поля  $\mathcal{E}_2^+(t)$  в результирующей амплитуде  $\tilde{\delta}^+(\omega' - \omega, t)$  будут уничтожаться вклады собственных колебаний, и во вторичном излучении в течение действия импульса будет отсутствовать флуоресценция (подобно тому как при облучении полем  $\mathcal{E}_2^-(t)$  вдали от резонанса). Текущий спектр вторичного излучения для этого случая приведен сверху на рис. 2. Значения  $\tilde{J}(\omega', t)$  для указанных значений  $t$ , частота и время взяты в тех же единицах, что и на рис. 1.

При преобразовании поля  $\mathcal{E}_2^-(t)$  в резонансе со средней частотой, слагаемые в  $\tilde{\delta}^-(\omega' - \omega, t)$ , соответствующие возбуждению собственных колебаний, складываются и, соответственно, вторичное излучение содержит флуоресценцию.

(подобно тому как при облучении полем  $\mathcal{E}_2^+(t)$  вдали от резонанса). Текущий спектр вторичного излучения для этого случая приведен внизу на рис. 2. Как видно из рис. 2, в начальные моменты времени ( $t \leq \gamma^{-1}$ ) существенную

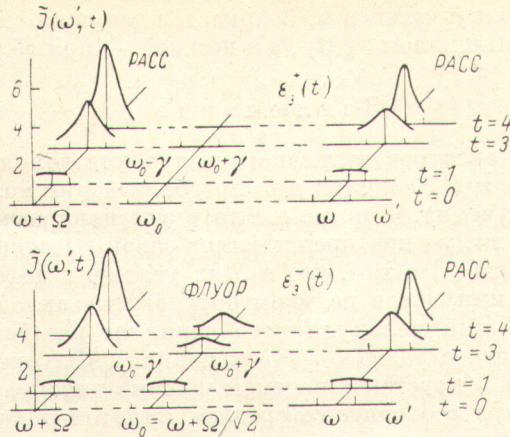


Рис. 2. Текущий спектр вторичного излучения при бихроматическом облучении, включаемом в  $t=0$ , для  $\Omega=50\gamma$  и  $\Delta=0$ .

часть вторичного излучения составляет флуоресценция. Однако, при продолжающемся облучении полем  $\mathcal{E}_2^-(t)$  значение максимума полосы флуоресценции в текущем спектре уже при  $t=5\gamma^{-1} \div 6\gamma^{-1}$  практически перестает увеличиваться, в то время как для полосы рассеяния оно продолжает нарастать пропорционально времени.

#### Преобразование треххроматического поля

Амплитуда  $b(t)$  при облучении осциллятора треххроматическими полями  $\mathcal{E}_3^\pm(t)=2E_0(1 \pm \cos \Omega t) \cos \omega t$  дается формулой (18) работы [1]. Соответствующее выражение для  $\tilde{b}(\omega' - \omega, t)$  имеет вид

$$\tilde{b}^\pm = \frac{e\mathcal{E}_0}{4im\omega_0} [2\Phi(0) \pm \Phi(\Omega) \pm \Phi(-\Omega)], \quad (21)$$

Таким образом, спектрально-временные характеристики вторичного излучения при облучении осциллятора треххроматическим полем могут быть представлены с помощью формул (3),

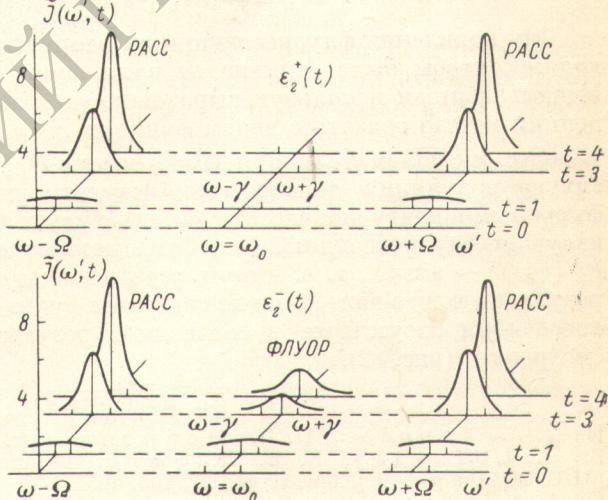


Рис. 3. Текущий спектр вторичного излучения при треххроматическом облучении, включаемом в  $t=0$ , для  $\Omega=10^2\gamma$  и  $\Delta=\Omega/\sqrt{2}$ .

(4) и (21) суммой соответствующих функций для трех прямоугольных импульсов с частотами  $\omega$ ,  $\omega + \Omega$  и  $\omega - \Omega$ , и интерференционных членов.

Результаты анализа выражения (21) во многом подобны результатам, полученным для случая преобразования бихроматического поля. Так, при облучении полем  $\mathcal{E}_3^-(t)$  на значительном удалении от резонанса ( $\Delta \gg \Omega, \gamma$ ) в сумме (21) взаимно уничтожаются все три части функций  $\Phi$ , обозначенные выше как  $\Phi_2$ , и, следовательно, вторичное излучение не должно содержать флуоресцен-

ции. При облучении полем  $\mathcal{E}_3^+(t)$  в случае  $\Delta=\Omega/\sqrt{2}$  имеет место гашение флуоресценции, аналогично гашению при облучении бихроматическим полем для  $\Delta=0$ . Соответствующие текущие спектры в тех же единицах, что и на рис. 2, приведены на рис. 3 при  $\Omega=100\gamma$ ; для частоты и времени используются единицы  $\gamma$  и  $\gamma^{-1}$ . В верхней части рис. 3 приведен текущий спектр вторичного излучения при облучении полем  $\mathcal{E}_3^+(t)$ , а в нижней — при облучении полем  $\mathcal{E}_3^-(t)$ .

### Заключение

Анализ текущих спектров вторичного излучения дополнил временное описание отмечавшихся в [1] явлений при преобразовании молекулами би- и трихроматического излучения. Показано, что в установившемся режиме модулированное вторичное излучение представляет собой рассеяние. Это заключение согласуется с выводом [1] о том, что в этих условиях деформация отыбающей последовательности импульсов целиком обусловлена вкладом дополнительных вынужденных колебаний молекулярного осциллятора (без участия собственных колебаний и, следовательно, флуоресценции). Флуоресценция не должна появляться также и в неустановившемся режиме преобразования бихроматического излучения при резонанссе со средней частотой (а также для некоторых случаев трихроматического поля излучения), если внешнее поле включается в фазе максимума результирующей амплитуды. Отсутствие флуоресценции при этом объясняется компенсацией неодинаковых по знаку вкладов от спектральных компонент облучения в собственные колебания осциллятора. Однако в случае включения поля в другой фазе (в особенности в фазе, соответствующей минимуму амплитуды) должна возникать флуоресценция, в согласии с объяснением происхождения деформации отыбающей импульсов облучения, которое дано в [1] на основе изучения временных характеристик вторичного излучения.

Заметим, что в [1], функцию  $x(t)$ , описывающую неустановившиеся колебания осциллятора ( $\gamma t \ll 1$ ) под действием поля  $\mathcal{E}(t)$ , можно представить в виде колебания с частотой  $\omega_0$ , модулированного функцией  $\tilde{F}(\omega_0, t) = \int_0^t \mathcal{E}(\tau) \exp(i\omega_0\tau) d\tau$

$$x(t) = - (m\omega_0)^{-1} e \operatorname{Im} \tilde{F}(\omega_0, t) \exp(-i\omega_0 t). \quad (22)$$

Для появления флуоресценции во вторичном излучении осциллятора необходимо, чтобы была отлична от нуля фурье-компоненты  $x(t)$  на частоте  $\omega_0$ . Учитывая это и используя выражение (22), наличие или отсутствие флуоресценции можно связать с видом функции  $F(\omega_0, t)$ <sup>1</sup>. Так, при облучении бихроматическим полем  $\mathcal{E}_2^-(t)$  при  $\omega=\omega_0$  имеем  $\tilde{F}_2(\omega_0, t) \sim (1-\cos\Omega t)$ , т. е. в этом случае модуляция такова, что результирующее колебание  $x(t)$  содержит фурье-компоненту на частоте  $\omega_0$ , и в неустановившемся режиме осциллятор излучает флуоресценцию. Для бихроматического поля  $\mathcal{E}_2^+(t)$  при  $\omega=\omega_0$  имеем  $\tilde{F}_2^+(\omega_0, t) \sim \sin\Omega t$ , т. е. в этом случае имеем «балансную модуляцию», так что результирующее колебание не содержит фурье-компоненту с частотой  $\omega_0$  и флуоресценция отсутствует в согласии с результатами приведенного выше рассмотрения (рис. 2).

### Литература

- [1] В. А. Морозов, П. П. Шорыгин. Опт. и спектр., 51, 992, 1981.
- [2] Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц. Теория поля. ГИФМЛ, М., 1960.
- [3] С. Н. Раге. J. Appl. Phys., 23, 103, 1952.
- [4] А. А. Харкевич. Спектры и анализ. ГИФМЛ, М., 1962.
- [5] В. В. Хижняков, И. К. Ребане. Изв. АН ЭССР, 26, 260, 1977.
- [6] S. Mukamel, J. Jortner. J. Chem. Phys., 62, 3609, 1975.

Поступило в Редакцию 2 декабря 1980 г.

<sup>1</sup> Величина  $|F(\omega_0, t)|^2$  определяет интенсивность текущего спектра облучения на частоте  $\omega_0$ .