

ВЫДЕЛЕНИЕ ВКЛАДА СТОЛКНОВЕНИЙ, ИЗМЕНЯЮЩИХ СКОРОСТЬ ЧАСТИЦ, В ЗАТУХАНИЕ ОТКЛИКА СТИМУЛИРОВАННОГО ФОТОННОГО ЭХА В ГАЗЕ**Е. Н. Ахмедшина^{*}, Л. А. Нефедьев, Ю. А. Нефедьев, Г. И. Гарнаева, Н. Э. Замалиев**

УДК 621.373.8;533.15

*Казанский (Приволжский) федеральный университет,
420008, Казань, ул. Кремлевская, 16, Россия; e-mail: ekanika8@gmail.com**(Поступила 7 августа 2018)*

Исследовано влияние столкновений с изменением скорости частиц на интенсивность отклика стимулированного фотонного эха в газовой среде. Показано, что наибольшее влияние такие столкновения оказывают при непараллельных волновых векторах возбуждающих импульсов. Предложена аппроксимационная зависимость интенсивности отклика стимулированного фотонного эха от временного промежутка между вторым и третьим возбуждающими лазерными импульсами, позволяющая выделить вклад в затухание отклика столкновений с изменением направления скорости частиц, что представляет интерес для оптической когерентной эхо-спектроскопии.

Ключевые слова: *спектральная диффузия, стимулированное фотонное эхо, неоднородное уширение, столкновения с изменением скорости частицы.*

The effect of collisions for which the particle velocity is changed on the intensity of the stimulated photon echo response in a gaseous medium is investigated. It is shown that such collisions have the greatest influence on the intensity for the non-parallel wave vectors of exciting pulses. An approximate dependence of the intensity of the response of the stimulated photon echo on the time interval between the second and third exciting laser pulses is proposed. This dependence permits to differentiate the contribution of collisions with the change of the velocity of particles to the attenuation of the response. It is of interest for optical coherent echo spectroscopy.

Keywords: *spectral diffusion, stimulated photon echo, inhomogeneous broadening, collision with a change in particle velocity.*

Введение. В настоящее время широко используются методы оптической эхо-спектроскопии для исследования процессов релаксации в различных средах [1, 2], в том числе в газах [3, 4], что в свою очередь позволяет применить фотонное эхо и его модификации для экспериментальной проверки теоретических моделей столкновительного взаимодействия частиц [5, 6]. При этом одним из основных механизмов, влияющих на параметры отклика газовых систем при оптическом когерентном импульсном лазерном возбуждении, является движение частиц газа и их столкновения. За счет столкновений с изменением направления скорости частиц в газе частотные сдвиги излучения атомов случайным образом изменяются (спектральная диффузия в пределах неоднородно уширенной линии), что приводит к некоррелированности неоднородного уширения в разные моменты времени и частичной потере фазовой памяти и, как результату, частичной потере воспроизводимой информации, закодированной во временной форме объектного лазерного импульса [7, 8].

В [9] показано, что наибольшее влияние на интенсивность стимулированного фотонного эха (СФЭ) такие столкновения оказывают при непараллельных волновых векторах возбуждающих лазерных импульсов.

DIFFERENTIATION OF THE CONTRIBUTION OF COLLISIONS CHANGING THE SPEED OF PARTICLES TO THE ATTENUATION OF THE STIMULATED PHOTON ECHO RESPONSE IN GAS**E. N. Ahmedshina^{*}, L. A. Nefediev, Y. A. Nefedev, G. I. Garnaeva, N. E. Zamaliev** (*Kazan Federal University, 16 Kremlin Str., Kazan, 420008, Russia; e-mail: ekanika8@gmail.com*)

В данной работе предложена аппроксимационная зависимость интенсивности отклика СФЭ от временного промежутка между вторым и третьим возбуждающими лазерными импульсами, с помощью которой можно выделить вклад в необратимую релаксацию неупругих, упругих столкновений и столкновений, изменяющих направление скорости частиц при непараллельных волновых векторах возбуждающих импульсов.

Основные уравнения. Описание формирования эхо-голограмм в газах требует одновременного учета доплеровских сдвигов частот излучения частиц, изменения их положения и ориентации в пространстве, столкновений частиц, а также вырождения их энергетических уровней по какому-либо квантовому числу. В случае ударного механизма уширения линии резонансного перехода в лабораторной системе координат уравнение для матрицы плотности имеет вид [10]:

$$\left(\frac{\partial}{\partial t} + \frac{\partial \Delta \mathbf{r}}{\partial t} \nabla\right) \rho_{\gamma\alpha}^{J_1 J_2} \left(1 - \frac{\mathbf{n}}{c} \frac{\partial \Delta \mathbf{r}}{\partial t}\right)^{-1} = \frac{i}{\hbar} (H_{J_1}^0 - H_{J_2}^0) \rho_{\gamma\alpha}^{J_1 J_2} + \frac{i}{\hbar} \sum_{\beta} (V_{\gamma\beta}^{J_1 J_2} \rho_{\beta\alpha}^{J_1 J_2} - V_{\beta\alpha}^{J_1 J_2} \rho_{\gamma\beta}^{J_1 J_2}) - N \langle v (\sigma'_{\gamma\alpha} - i\sigma''_{\gamma\alpha}) \rangle \rho_{\gamma\alpha}^{J_1 J_2}, \quad (1)$$

где J_i — полный момент i -го уровня; α, β, γ — подуровни вырожденных уровней; $\Delta \mathbf{r}$ — смещение частицы за счет ее движения для рассматриваемых интервалов времени; \mathbf{n} — направление распространения возбуждающего импульса; $V_{\beta\beta}^{JJ}$ — матричные элементы оператора взаимодействия атома с электромагнитным излучением; H^0 — гамильтониан невозмущенного атома; N — концентрация возмущающих частиц; v — относительная скорость атома и возмущающей частицы; σ' и σ'' — сечения уширения и сдвига спектральной линии; c — скорость распространения импульса в среде.

Спектральная неоднородность в газе обусловлена разбросом частиц по скоростям и зависимостью частоты Ω_{ik}^j (переход $i \rightarrow k$) j -й молекулы от скорости (эффект Доплера). В отсутствие столкновений неоднородные уширения в разные моменты времени и на разных энергетических переходах полностью коррелируют между собой, так как частотные сдвиги за счет движения частиц пропорциональны друг другу на разных переходах и на разных временных интервалах [9].

Столкновения с изменением направления скорости частиц приводят к случайным изменениям проекции скорости на направление наблюдения и, соответственно, случайным изменениям частотных сдвигов при каждом отдельном столкновении. За интервал времени τ между моментами времени наблюдения системы изменение угла между скоростью частицы и направлением наблюдения

$$\Delta \Omega_{ik}^j(\theta_j, \Delta \theta_\eta) = \Omega_{0ik}^j \left[v_j \cos(\theta_j + \sum_{\eta=1}^{N(\tau)} \Delta \theta_\eta) / c \right], \quad (2)$$

где $\Delta \theta_\eta$ — угол случайного изменения направления скорости частицы в результате отдельного η -го столкновения. Таким образом, каждая изохромата доплеровски уширенной линии случайным образом смещается в результате каждого столкновения с изменением скорости частицы. Это приводит к некоррелированности неоднородного уширения в газе в разные моменты времени и потере фазовой памяти системы [11].

Интенсивность электрического поля отклика СФЭ с учетом (1) и (2) в случае линейной поляризации возбуждающих лазерных импульсов определяется выражением, аналогичным [12]:

$$I = EE^*, \quad (3)$$

где

$$E \approx \frac{1}{\pi} \int_0^\pi d\theta \int_0^\infty \exp \left\{ i \Omega_{0ik}^j \frac{v}{c} (t \cos(\theta(t)) - \tau \cos(\theta(\tau_1)) - \tau_2 \cos(\theta(\tau_2))) \right\} F(v) \times \exp \left\{ -N \left[\langle v \sigma_1' \rangle \tau_2 + \langle v (\sigma_2' - i\sigma_2'') \rangle \tau_1 \right] \right\} dv, \quad (4)$$

$$\theta(t) = \theta + \sum_{\eta=1}^{N(t)} \Delta \theta_\eta, \quad \theta(\tau_1) = \theta + \sum_{\eta=1}^{N(\tau_1)} \Delta \theta_\eta, \quad \theta(\tau_2) = \theta + \sum_{\eta=1}^{N(\tau_2)} \Delta \theta_\eta.$$

τ_1 — промежуток времени между первым и вторым возбуждающими лазерными импульсами; τ_2 — промежуток времени между вторым и третьим возбуждающими лазерными импульсами; σ_1' — сечение неупругих столкновений частиц; σ_2' и σ_2'' — сечения, обусловленные как упругими, так и неупругими столкновениями.

Расчет по выражению (4) для интенсивности отклика СФЭ представлен на рис. 1 для случая, когда изменяются интервалы времени между вторым и третьим импульсами. Полученная зависимость интенсивности СФЭ при варьировании временного интервала τ_2 между вторым и третьим импульсами обусловлена столкновениями с изменением направления скорости частиц при угле $\varphi = 2^\circ$ между волновыми векторами \mathbf{k}_1 и \mathbf{k}_2 возбуждающих лазерных импульсов в отсутствие неупругих столкновений частиц.

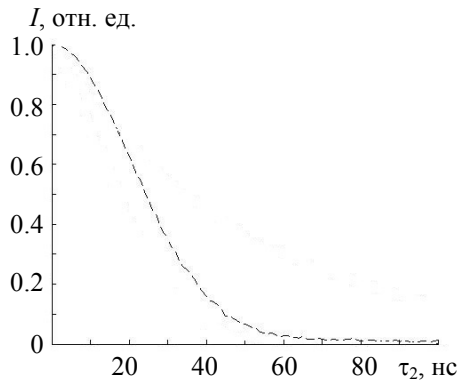


Рис. 1. Зависимость интенсивности СФЭ при изменении временного интервала τ_2 между вторым и третьим импульсами при $T_1 \gg \tau_2$ (T_1 — время продольной релаксации за счет неупругих столкновений частиц)

Аппроксимация спада интенсивности стимулированного фотонного эха. Одним из основных механизмов, влияющих на параметры отклика газовых систем при оптическом когерентном импульсном лазерном возбуждении, являются движение частиц газа и их столкновения. Например, затухание амплитуды E электрического поля отклика СФЭ при варьировании временного интервала τ_2 между возбуждающими лазерными импульсами не соответствует экспоненциальному закону

$$E \approx \exp\{-2\tau_2/T_1\},$$

где T_1 — время продольной необратимой релаксации системы.

Для малых временных интервалов τ_2 между возбуждающими лазерными импульсами напряженность электрического поля отклика

$$E \approx \exp\{-\beta\tau_2^3\},$$

при достаточно больших временных интервалах ($\tau_2 \approx T_1$) [9, 13]

$$E \approx \exp\{\alpha\tau_2\}.$$

В газовых средах описание необратимой релаксации резонансного перехода с помощью времен продольной T_1 и поперечной T_2 релаксации является весьма грубым приближением, так как существенны как неупругие столкновения частиц, так и упругие столкновения и столкновения с изменением скорости. Такие столкновения приводят к случайным изменениям угла между направлением наблюдения и скоростью частицы, что в свою очередь приводит к случайным сдвигам частот каждой частицы (спектральной диффузии). Результатом является нарушение фазовых соотношений между разными “скоростными пакетами” частиц в пределах неоднородно уширенной линии резонансного перехода, а это приводит к изменению величины корреляции неоднородного уширения в разные моменты времени и затуханию амплитуды E электрического поля отклика СФЭ с характерными временными зависимостями. В общем случае интенсивности сигналов СФЭ при их формировании в газовых средах — сложные функции большого числа релаксационных характеристик. Поэтому получить информацию о каждой из них в отдельности на первый взгляд не представляется возможным.

Указанные выше трудности потребовали разработки иного подхода к спектроскопическим исследованиям для газовых сред, например, определения вклада неупругих столкновений, т. е. определения T_1 при варьировании временного интервала τ_2 . Однако такое определение T_1 может содержать значительные ошибки за счет влияния столкновений с изменением направления скорости частиц. Эти ошибки возникают при непараллельных волновых векторах \mathbf{k}_1 и \mathbf{k}_2 , что обычно используется в экспериментах для разведения возбуждающих лазерных импульсов и откликов СФЭ.

Затухание отклика СФЭ обусловлено как неупругими столкновениями частиц, так и упругими столкновениями с изменением скорости. Для их разделения нами предложена аппроксимация выражения (4) в виде

$$J \approx \exp\{-\beta\tau_2^n\} \exp\{-2\tau_2/T_1\}, \quad (5)$$

где параметры β и n найдены с помощью метода наименьших квадратов.

Такая аппроксимация позволяет отдельно представить вклады в затухание отклика СФЭ неупругих столкновений частиц и столкновений с изменением направления скорости при варьировании временного интервала τ_2 (рис. 2).

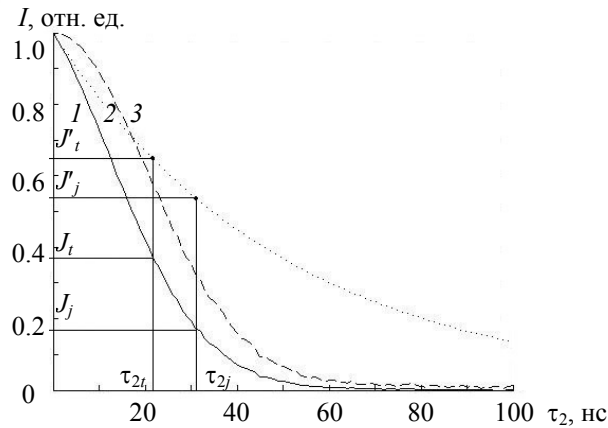


Рис. 2. Зависимость интенсивности СФЭ при изменении временного интервала между вторым и третьим импульсами: 1 — общий спад интенсивности, 2 — спад интенсивности за счет продольной необратимой релаксации T_1 (неупругие столкновения частиц), 3 — спад за счет столкновений с изменением направления скорости частиц при угле $\varphi = 2^\circ$ между волновыми векторами \mathbf{k}_1 и \mathbf{k}_2

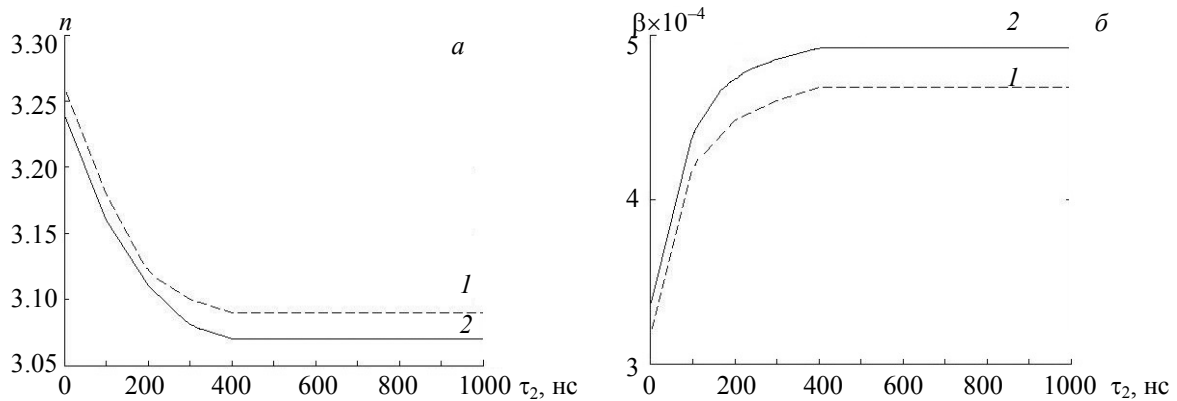


Рис. 3. Зависимости $n(\tau_2)$ (а) и $\beta(\tau_2)$ (б) при $T_1 = 500$ (1) и 1000 нс (2), $\varphi = 2^\circ$ между волновыми векторами \mathbf{k}_1 и \mathbf{k}_2

Выберем на кривой 1 на рис. 3 две точки i, j , тогда интенсивность отклика СФЭ в этих точках

$$J_i \approx \exp\{-\beta\tau_{2i}^n\} \exp\{-2\tau_{2i}/T_1\}, \quad (6)$$

$$J_j \approx \exp\{-\beta\tau_{2j}^n\} \exp\{-2\tau_{2j}/T_1\}. \quad (7)$$

По кривой 2 определим вклад в релаксацию неупругих столкновений частиц. Используя отношение интенсивности отклика к $\exp\{-\beta\tau_2^n\}$, получим

$$J'_i = J_i / \exp\{-\beta\tau_{2i}^n\}, \quad (8)$$

$$J'_j = J_j / \exp\{-\beta\tau_{2j}^n\}. \quad (9)$$

Очевидно, что время продольной необратимой релаксации T_1 для точек i, j можно получить простым логарифмированием выражений (8), (9):

$$T_1 = 2(\tau_{2j} - \tau_{2i}) / \ln(J_i'/J_j'). \quad (10)$$

Для расчетов по формуле (10) необходимо знание параметров n и β , которые являются функциями времени и углов между волновыми векторами возбуждающих импульсов. На рис. 3 приведена зависимость параметров n и β от τ_2 при разных значениях T_1 и угле $\varphi = 2^\circ$ между волновыми векторами \mathbf{k}_1 и \mathbf{k}_2 . Как следует из рис. 3, при достаточно больших временных интервалах τ_2 параметры n и β стремятся к постоянному значению. Аналогичная ситуация наблюдается для других углов между волновыми векторами. Таким образом, столкновения с изменением скорости частиц оказывают влияние на интенсивность отклика СФЭ в газовой среде при непараллельных волновых векторах возбуждающих импульсов.

Заключение. Полученная аппроксимационная зависимость дает возможность выделить вклад в необратимую релаксацию неупругих, упругих столкновений и столкновений, изменяющих направление скорости частиц при непараллельных волновых векторах возбуждающих импульсов. Это существенно при непараллельных волновых векторах первого и второго возбуждающих импульсов, что обычно осуществляется в экспериментах для пространственного отделения отклика и возбуждающих импульсов.

Работа выполнена за счет средств субсидии, выделенной в рамках государственной поддержки Казанского (Приволжского) федерального университета в целях повышения его конкурентоспособности среди ведущих мировых научно-образовательных центров.

- [1] R. L. Shoemaker, J. I. Steinfeld. Laser and Coherence Spectroscopy, Academic Press, New York-London (1978)
- [2] Э. А. Маныкин, В. В. Самарцев. Оптическая эхо-спектроскопия, Москва, Наука (1984)
- [3] И. В. Евсеев, Н. Н. Рубцова, В. В. Самарцев. Фотонное эхо и фазовая память в газах, Казань, КГУ (2009)
- [4] М. В. Евсеев, И. В. Ермаченко, В. В. Самарцев. Деполяризующие столкновения в нелинейной термодинамике, Москва, Наука (1992)
- [5] Н. Н. Рубцова, Л. С. Василенко, Е. Б. Хворостов. ЖЭТФ, **116**, № 1 (1999) 47—56
- [6] N. N. Rubtsova, V. N. Ishchenko, E. B. Khvorostov, S. A. Kochubei, V. A. Reshetov, I. V. Yevseyev. Phys. Rev., **A84**, N 3 (2011) 033413/1-033413/11
- [7] Е. Н. Ахмедшина, Л. А. Нефедьев, Г. И. Гарнаева. Журн. прикл. спектр., **84**, № 2 (2017) 322—326 [E. N. Ahmedshina, L. A. Nefediev, G. I. Garnaeva. J. Appl. Spectr., **84** (2017) 337—341]
- [8] Е. Н. Ахмедшина, Л. А. Нефедьев, Г. И. Гарнаева. Журн. прикл. спектр., **82**, № 4 (2015) 632—635 [E. N. Ahmedshina, L. A. Nefediev, G. I. Garnaeva. J. Appl. Spectr., **82** (2015) 669—672]
- [9] Л. А. Нефедьев. Опт. и спектр., **52**, № 6 (1982) 981—986
- [10] Л. А. Нефедьев. Опт. и спектр., **59**, № 4 (1985) 841—846
- [11] Л. А. Нефедьев, Г. И. Хакимзянова. Опт. и спектр., **98**, № 1 (2005) 41—45
- [12] L. A. Nefediev, A. R. Sakhbieva, E. I. Nizamova. J. Russ. Laser Res., **34**, N 4 (2013) 355—359
- [13] A. Flusberg. Opt. Commun., **29**, N 1 (1979) 123—125