

На правах рукописи

Ледовских Дмитрий Васильевич

КОГЕРЕНТНЫЕ ПЕРЕХОДНЫЕ ПРОЦЕССЫ
НА КОЛЕБАТЕЛЬНО-ВРАЩАТЕЛЬНОМ ПЕРЕХОДЕ МОЛЕКУЛЫ $^{13}\text{CH}_3\text{F}$

01.04.05 «Оптика»

АВТОРЕФЕРАТ

диссертации на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

Новосибирск – 2011

Работа выполнена в Учреждении Российской академии наук Институте физики полупроводников им. А.В. Ржанова Сибирского отделения РАН

Научный руководитель	доктор физико-математических наук Рубцова Наталия Николаевна
Официальные оппоненты:	доктор физико-математических наук Скворцов Михаил Николаевич
	доктор физико-математических наук Рябцев Игорь Ильич
Ведущая организация	Казанский физико-технический институт Казанского научного центра Российской академии наук

Защита состоится _____ 2011 г. в _____ на заседании диссертационного совета Д 003.005.01 в Учреждении Российской академии наук Институте автоматизации и электрометрии СО РАН по адресу: г. Новосибирск, проспект Академика Коптюга, д. 1.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке ИАиЭ СО РАН.

Автореферат разослан _____ 2011 г.

Ученый секретарь диссертационного совета
д.ф.-м.н.

Насыров К.А.

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Актуальность темы

Спектроскопия газов является одним из основных и самых эффективных источников информации о строении атомов и молекул. Различные спектроскопические методы исследования веществ позволяют с большой точностью изучать их свойства, особенности взаимодействия с другими частицами и с излучением.

Оптически разрешенные спектральные переходы в газах низкого давления имеют существенное доплеровское уширение. При этом однородное уширение линии обычно значительно меньше (в 1000 раз при давлениях порядка 1 мТорр) характерной доплеровской ширины, которая препятствует получению информации о тонкой и сверхтонкой структуре спектральных переходов в разреженных газах. К настоящему времени известен ряд методов бездоплеровской спектроскопии, например, лазерная спектроскопия насыщенного поглощения [1,2]. Недостатком этого метода является присущее ему полевое уширение резонансов насыщенного поглощения. Поэтому эксперименты приходится проводить в условиях слабого насыщения, что приводит к резкому падению регистрируемого сигнала. Альтернативой спектроскопии насыщенного поглощения может служить когерентная спектроскопия, использующая когерентные переходные процессы (КПП).

Когерентными называются процессы нелинейного взаимодействия световых волн, существенно зависящие от фазовых соотношений. Отдельный класс когерентных явлений составляют так называемые когерентные переходные процессы. Когерентные переходные процессы можно классифицировать по нескольким базовым типам.

В качестве основного когерентного явления можно выделить оптические нутации (осцилляции Раби) – периодические колебания разности населенностей энергетических уровней и микроскопической поляризации среды под действием резонансного электромагнитного излучения. Для однородного ансамбля частиц частота колебаний определяется величиной $\Omega_R = d_{ab} \cdot E / \hbar$ (частота Раби), где d_{ab} – матричный элемент дипольного момента исследуемого перехода, резонансного излучению, E – напряжённость электрического поля излучения, \hbar – постоянная Планка. Учёт необратимой релаксации приводит к затуханию оптических нутаций, что переводит явление в разряд нестационарных. Ещё более быстрое затухание нестационарных оптических нутаций происходит в неоднородном ансамбле частиц. В этом случае, кроме резонансных частиц, для которых частота перехода ω_0 равна частоте излучения ω , появляются также частицы с другими собственными частотами. При этом вместо частоты Раби $\Omega_R = d_{ab} \cdot E / \hbar$ возникает

модифицированная частота Раби $\Omega_{Rm} = \{ (d_{ab} \cdot E / \hbar)^2 + (\omega_0 - \omega)^2 \}^{1/2}$, где $(\omega_0 - \omega)$ – отстройка частоты излучения ω от частоты перехода ω_0 . Для резонансных частиц неоднородного ансамбля кроме отстройки $(\omega_0 - \omega)$ возникают дополнительные члены, обусловленные неоднородным уширением перехода, и результат вычислений когерентного отклика среды должен быть усреднён по неоднородно уширенному контуру поглощения. В результате нестационарные оптические нутации затухают существенно быстрее, чем за счёт необратимой релаксации.

Второй основной тип когерентных переходных процессов – это затухание свободной поляризации. Это процесс уменьшения поляризации среды после прекращения действия короткого импульса поляризующего излучения. Затухание свободной поляризации в неоднородном ансамбле резонансных частиц обусловлено двумя причинами – процессами необратимой релаксации и эффектом Доплера (эта причина затухания свободной поляризации иногда называется обратимой релаксацией).

Наконец, ещё один тип когерентных переходных процессов – фотонное эхо. Фотонное эхо, по сути, представляет собой стимулированное когерентное излучение среды в виде короткого импульса, обусловленное восстановлением фазового согласования отдельных излучателей после воздействия на среду двух или более коротких импульсов резонансного излучения. Для формирования фотонного эха необходимо наличие неоднородного ансамбля, в случае разреженных газов вызванного эффектом Доплера.

В диссертационной работе исследуются базовые типы когерентных переходных процессов: нестационарные оптические нутации (НОН), затухание свободной поляризации (ЗСП), фотонное эхо (ФЭ) и стимулированное фотонное эхо (СФЭ).

Для получения когерентных переходных процессов в работе применен метод штарковского переключения уровней, предложенный в начале 70-х годов R.G. Brewer, R.L. Shoemaker [3]. Метод осуществляет гетеродинный прием слабых сигналов когерентных переходных процессов (затухания свободной поляризации, фотонного эха, стимулированного фотонного эха) за счет биений излучения непрерывного лазера и смещенных по частоте сигналов когерентных переходных процессов.

Актуальность работы обусловлена возможностью исследования чрезвычайно слабых откликов среды за счет гетеродинного приема. Например, исследованный в данной работе процесс затухания свободной поляризации в газе $^{13}\text{CH}_3\text{F}$ имел мощность на уровне нескольких пико-Ватт.

Цель диссертации

Выяснить применимость когерентных переходных процессов, формируемых при помощи электрических импульсов в присутствии непрерывного насыщающего излучения лазера, для исследования столкновений в газе.

Задачи диссертации

1. Найти область экспериментальных условий, оптимальных для формирования сигналов затухания свободной поляризации, оптических нутаций, фотонного эха, стимулированного фотонного эха.
2. Измерить скорости затухания сигналов фотонного эха как функции задержек между электрическими импульсами, формирующими сигналы эха, при разных давлениях газа.
3. Измерить скорости затухания сигналов стимулированного фотонного эха как функции задержек между вторым и третьим электрическими импульсами, формирующими сигналы эха, при разных давлениях газа.
4. Выяснить влияние напряженности электрического поля и интенсивности возбуждающего излучения на кинетику сигнала задержанных оптических нутаций. Определить величину однородного уширения линии по кинетикам сигнала задержанных оптических нутаций для чистого $^{13}\text{CH}_3\text{F}$ и смеси $^{13}\text{CH}_3\text{F}$ с буферными газами.

Научная новизна

Научная новизна работы заключается в следующем:

1. Наблюдалась неэкспоненциальная зависимость сигнала фотонного эха от задержки между электрическими импульсами для всех исследованных давлений газа. Неэкспоненциальное затухание фотонного эха может свидетельствовать о том, что в области малых задержек между импульсами электрического поля затухание эха определяется неупругими столкновениями, а в области больших задержек между импульсами электрического поля – суммарным вкладом упругих и неупругих процессов.
2. Затухание сигнала стимулированного фотонного эха (как функция задержки между вторым и третьим электрическими импульсами, формирующими когерентный отклик) происходит существенно медленнее, чем затухание фотонного эха в области больших задержек (1,33 – 1,8 мкс). Это свидетельствует о нечувствительности стимулированного фотонного эха к упругим столкновениям с изменением скорости.

3. Подробно исследован метод задержанных оптических нутаций с точки зрения его применимости к измерению скоростей неупругой релаксации колебательно-вращательных уровней $^{13}\text{CH}_3\text{F}$ при формировании когерентных откликов методом переключения уровней за счёт эффекта Штарка в присутствии насыщающего излучения лазера. Показано экспериментально, что при использовании метода задержанных оптических нутаций измеренные скорости релаксации Γ совпадают в пределах погрешности измерений для интенсивностей от 0,12 до 1,11 Вт/см², а также в диапазоне напряжённостей электрического поля на внутренних («штарковских») электродах от 33 до 200 В/см. Экспериментально и теоретически установлено, что электрическое поле напряжённостью менее 20 В/см является слабым для заметного сдвига резонанса и не позволяет эффективно разделить молекулы на две группы, находящиеся в резонансе при включенном и выключенном электрическом поле.

Кинетика сигнала задержанных оптических нутаций в газе $^{13}\text{CH}_3\text{F}$ и его смесях с атомарными газами He, Ne, Kr, а также неполярными молекулами N₂, CO₂ оказалась немонотонной, в отличие от результатов ранних исследований. Предложена формула для обработки кинетики задержанных оптических нутаций с целью учёта затухания нутаций из-за диффузии по скоростям. Основными параметрами формулы являются скорости релаксации Γ и Γ_{slow} . Скорость неупругой релаксации Γ нарастает с ростом массы атомарного буфера. Скорость релаксации Γ в чистом полярном газе существенно выше скоростей релаксации с атомарными и молекулярными буферами.

Научная и практическая значимость

1. Показана возможность точных измерений однородного уширения спектральной линии Γ газа $^{13}\text{CH}_3\text{F}$ внутри доплеровски уширенного контура методами задержанных оптических нутаций и фотонного эха. В случае измерений методом задержанных оптических нутаций появляется возможность работать при разных интенсивностях возбуждающего излучения (от 0,12 до 1,11 Вт/см²) и в широком диапазоне напряжённостей электрического («штарковского») поля (от 33 до 200 В/см), при этом значения скоростей столкновительной релаксации совпадают в пределах погрешности.
2. Показано, что использование метода фотонного эха позволяет определять упругие и неупругие вклады в скорость релаксации в отличие от методов стимулированного фотонного эха и задержанных оптических нутаций.
3. Показано, что кинетика затухания сигнала стимулированного фотонного эха как функция задержки между вторым и третьим электрическими импульсами, формирующими когерентный отклик, происходит существенно медленнее, чем

затухание фотонного эха в области больших задержек (1,33 – 1,8 мкс). Это свидетельствует о нечувствительности стимулированного фотонного эха к упругим столкновениям с изменением скорости.

Основные положения, выносимые на защиту

1. Число наблюдаемых интерференционных пиков затухания свободной поляризации, сформированных на вращательном переходе R(4,3) колебательной полосы 0-1 моды ν_3 газа $^{13}\text{CH}_3\text{F}$, уменьшается с увеличением интенсивности возбуждающего излучения (от 0,2 до 2,34 Вт/см²), при этом нарастают сигналы оптических нутаций.
2. Затухание фотонного эха, сформированного на вращательном переходе R(4,3) колебательной полосы 0-1 моды ν_3 газа $^{13}\text{CH}_3\text{F}$, неэкспоненциально зависит от задержки между формирующими электрическими импульсами.
3. Затухание сигнала стимулированного фотонного эха (как функция задержки между вторым и третьим электрическими импульсами, формирующими когерентный отклик), происходит существенно медленнее, чем затухание фотонного эха в области больших задержек (1,33 – 1,8 мкс).
4. Скорость затухания задержанных оптических нутаций в области длительностей возбуждающего импульса от 1 до 2 мкс существенно выше скорости затухания в области от 2 до 9 мкс. Скорость затухания задержанных оптических нутаций в области длительностей от 1 до 2 мкс дает возможность определить однородные уширения линии в чистом газе $^{13}\text{CH}_3\text{F}$ и в смесях с буферными газами.

Апробация работы

Результаты по теме диссертационной работы докладывались на следующих школах и симпозиумах:

1. XI международная молодежная научная школа «Когерентная оптика и оптическая спектроскопия», 25-27 октября 2007 г., Казань, Россия.
2. XIII международная молодежная научная школа «Когерентная оптика и оптическая спектроскопия», 26 - 28 октября 2009 г., Казань, Россия.
3. IX международный симпозиум по фотонному эхо и когерентной спектроскопии (ФЭКС'2009), 26–31 октября 2009 г., Казань, Россия.

Личный вклад автора

Личный вклад соискателя в диссертационную работу заключается в проведении экспериментов, обработке, анализе и интерпретации экспериментальных результатов, построении модели явлений, оформлении публикаций. В диссертации представлены лишь те результаты, в получение которых вклад соискателя был доминирующим.

Публикации

Результаты представлены в 7 публикациях, из них 5 работ, опубликованных в ведущих рецензируемых научных журналах и изданиях, определенных Высшей аттестационной комиссией.

Структура и объем диссертации

Диссертация изложена на 106 страницах, включая список цитируемой литературы (63 источника), содержит 34 рисунка, 5 таблиц и состоит из введения, трёх глав, заключения.

СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

Во **Введении** дана краткая классификация когерентных переходных процессов. Обсуждается актуальность темы, приводится литературный обзор по фундаментальному и прикладному значению когерентных процессов. Рассмотрены основные методы формирования когерентных переходных процессов. Сформулированы основные цели и задачи диссертационной работы, приведены основные положения, выносимые на защиту.

Глава 1 посвящена качественному объяснению исследованных когерентных переходных процессов, сформированных на колебательно-вращательном переходе $^{13}\text{CH}_3\text{F}$ методом штарковского переключения уровней в присутствии непрерывного излучения лазера.

В параграфе 1.1 рассмотрен объект исследования – полярная молекула $^{13}\text{CH}_3\text{F}$. Дана схема молекулы, схема энергетических уровней исследуемого перехода. Представлен эффект Штарка для случаев, когда поляризация возбуждающего излучения параллельна электрическому полю ($\Delta M = 0$) или ортогональна ($\Delta M = \pm 1$). Приведены схемы расщепления энергетических уровней электрическим полем для правил отбора: $\Delta M = 0$ и $\Delta M = \pm 1$.

В параграфе 1.2 изложены основы метода формирования когерентных переходных процессов штарковским переключением уровней в газе $^{13}\text{CH}_3\text{F}$. Дано разъяснение того,

какие группы молекул доплеровского контура участвуют в образовании сигналов когерентных переходных процессов при включении и выключении электрического поля.

В параграфе 1.3 даны описания когерентных переходных процессов (ЗОН, ЗСП, ФЭ, СФЭ). Изложены основные особенности, а также рассмотрен метод формирования каждого когерентного переходного процесса. Приведены примеры осциллограмм (временные формы сигналов), полученных в данной работе.

В параграфе 1.4 проведены расчёты двух когерентных процессов (оптические нутации и затухание свободной поляризации), которые формируются одновременно при ступенчатом включении электрического поля. Численные расчеты отклика среды проводились в безразмерных единицах по формуле (1), которая получена из решения уравнения для матрицы плотности в приближении вращающейся волны:

$$S_{\infty} \sum_{M=-4}^4 \int_{-\infty}^{\infty} e^{-\frac{(kv_z)^2}{(ku)^2}} \left[\begin{array}{l} \frac{n_0 \cdot \chi_M \cdot \Gamma}{\Gamma^2 + (kV_z + M\varepsilon)^2 + \chi_M^2} + \\ + e^{-\Gamma t} \left[\begin{array}{l} n_0 \cdot \chi_M \cdot \Gamma \cdot \left(\frac{1}{\Gamma^2 + (kV_z)^2 + \chi_M^2} - \frac{1}{\Gamma^2 + (kV_z + M\varepsilon)^2 + \chi_M^2} \right) \cdot \cos \xi_M t + \\ + \frac{n_0 \cdot \chi_M \cdot M\varepsilon}{\Gamma^2 + (kV_z)^2 + \chi_M^2} \frac{\Gamma^2 \cdot (kV_z + M\varepsilon) - kV_z \cdot ((kV_z + M\varepsilon)^2 + \chi_M^2)}{\Gamma^2 + (kV_z + M\varepsilon)^2 + \chi_M^2} \frac{1}{\xi_M} \cdot \sin \xi_M t \end{array} \right] \end{array} \right] dV_z, \quad (1)$$

где M – магнитное квантовое число; k – волновой вектор излучения; V_z – проекция скорости молекул на ось z ; u – средняя тепловая скорость молекул; n_0 – равновесная разность населенности в отсутствие излучения; Γ – однородная ширина в единицах доплеровской ширины $ku = 39$ МГц; ε – напряженность электрического поля в единицах доплеровской ширины; χ_M – частота Раби для M -го перехода в единицах доплеровской ширины; ξ_M – модифицированная частота Раби в присутствии электрического поля и эффекта Доплера в единицах доплеровской ширины. В этой формуле первое слагаемое соответствует стационарному решению в присутствии электрического поля, остальные слагаемые представляют нестационарный когерентный отклик.

Рассмотрены предельные случаи. В пределе низкой интенсивности лазерного излучения такой, что $\chi_M \ll M\varepsilon$, частоты осцилляций $\xi_M \approx M\varepsilon$. При этом в начальные моменты времени взаимодействия среды с излучением наибольший вклад дает второе слагаемое, пропорциональное стационарной поляризации, наведенной лазерным излучением (перед включением электрического фронта). Это соответствует сигналу затухания свободной поляризации. Противоположный предельный случай высоких интенсивностей излучения $\chi_M \gg M\varepsilon$, тогда $\xi_M \approx \chi_M$ и преобладает сигнал оптической нутации. Дается качественное объяснение расчетных результатов, проиллюстрированы

рассчитанные отклики для параметров: напряженности электрического поля 76 В/см, 111 В/см и интенсивность излучения лазера 0,14 Вт/см² (предел низкой интенсивности); напряжённость электрического поля 35 В/см и интенсивность излучения 200 Вт/см² (предел высокой интенсивности). Пример рассчитанного сигнала для параметров: напряженность электрического поля 111 В/см и интенсивность излучения лазера 0,14 Вт/см² показан на рис. 1. Этот предварительный теоретический анализ помогает понять характер и особенности поведения экспериментальных кривых.

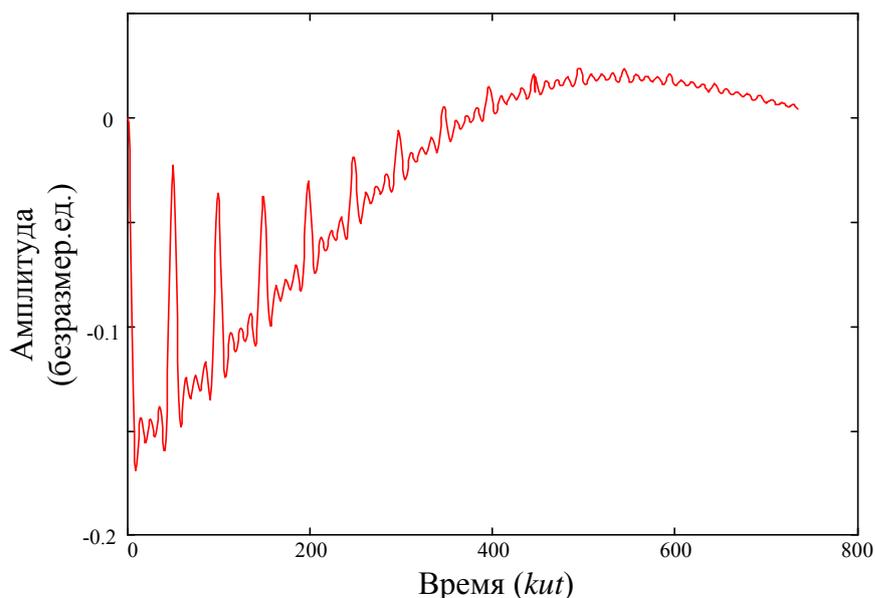


Рис. 1. Когерентный отклик с преобладанием затухания свободной поляризации (частота Раби существенно меньше штарковского сдвига)

В **Главе 2** детально изложена экспериментальная техника и методики измерений.

В параграфе 2.1 приведены параметры оборудования установки: параметры использованного в экспериментах CO₂-лазера, режим работы, способы изменения частоты излучения, параметры излучения; способы визуализации инфракрасного излучения для юстировки оптической схемы; параметры ячейки использованной для настройки частоты лазера на центр линии ¹³CH₃F и рабочей ячейки с электродами; параметры генераторов электрических импульсов; характеристики фотоприемника.

В параграфе 2.2 дается: описание работы оптической установки и ее электрических компонентов, детально изложена схема установки (рис. 2), рассмотрены возможности установки (изменение интенсивности, поворот плоскости поляризации излучения) и их реализация; описание вакуумной установки и методики работы с исследуемым и буферными газами, схема вакуумной установки.

В параграфе 2.3 изложены методики измерений задержанных оптических нутаций, затухания свободной поляризации, фотонного эха, стимулированного фотонного эха. Так как исследовались четыре когерентных явления (ЗСП, ФЭ, СФЭ, ЗОН), требующие

различных методик проведения эксперимента, описание каждой методики приведено отдельно.

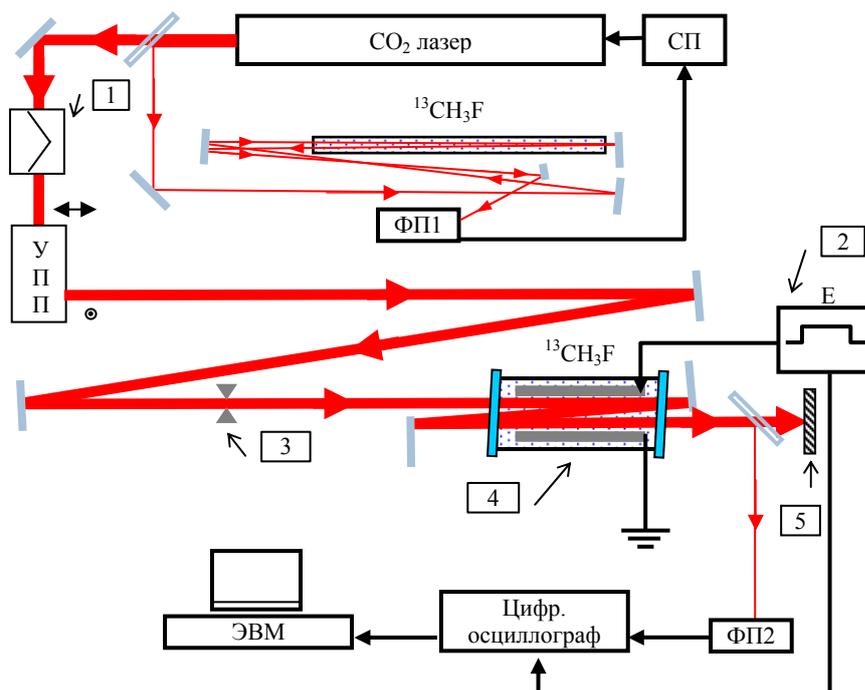


Рис. 2. Схема экспериментальной установки для исследования ЗОН, ФЭ, СФЭ. 1 – ослабитель мощности; 2 - генератор электрических импульсов; 3 - диафрагма; 4 - рабочая ячейка; 5 – бетонная плита; СПЧ - система подстройки частоты; ФП1, ФП2 - фотоприемники; УПП - устройство поворота поляризации

Показано на примере экспериментальных кинетических кривых как измерялись сигналы для каждого из когерентных переходных процессов. Рассмотрено, какие экспериментальные условия изменялись во время измерений для получения необходимых зависимостей.

Глава 3 посвящена экспериментальным результатам, полученным в данной работе.

В параграфе 3.1 изложены результаты исследования затухания свободной поляризации в газе $^{13}\text{CH}_3\text{F}$. Экспериментально показано, что при увеличении напряженности электрического поля линейно увеличивается частота и уменьшается ширина интерференционных пиков в сигнале затухания свободной поляризации. Этот результат подтверждается в работе [4], где приведена формула для определения периода и длительности пиков:

$$T = 2\pi/\delta E_{St}; \Delta T = 2\pi/9\delta E_{St},$$

где

$$\delta = \frac{1}{\hbar} \left(\frac{d_0 K}{J_0 (J_0 + 1)} - \frac{d_1 K}{J_1 (J_1 + 1)} \right), \quad (2)$$

E_{St} – напряженность электрического поля; J_0, J_1 – квантовые числа углового момента основного и возбужденного состояний; K – квантовое число проекции углового момента на ось симметрии молекулы в основном и возбужденном состояниях; d_0, d_1 – дипольные моменты основного и возбужденного состояний.

Показано, что регистрация сигналов затухания свободной поляризации как функции напряженности электрического поля позволяет определить значение величины $\delta = 0,15 \cdot d_0 - 0,1 \cdot d_1$, которая представляет взвешенную разность дипольных моментов. Это выражение получено из формулы (2) при значениях $J_0 = 4, J_1 = 5, K = 3$. Была получена зависимость сигнала затухания свободной поляризации от интенсивности возбуждающего излучения, из которой видно, что с увеличением интенсивности возбуждающего излучения уменьшается контрастность и количество интерференционных пиков сигнала затухания свободной поляризации (рис. 3).

Уменьшение количества интерференционных пиков сигнала затухания свободной поляризации происходит потому, что при увеличении интенсивности лазерного излучения увеличивается диапазон скоростей молекул, взаимодействующих с излучением. Это приводит к ускорению декогеренции среды.

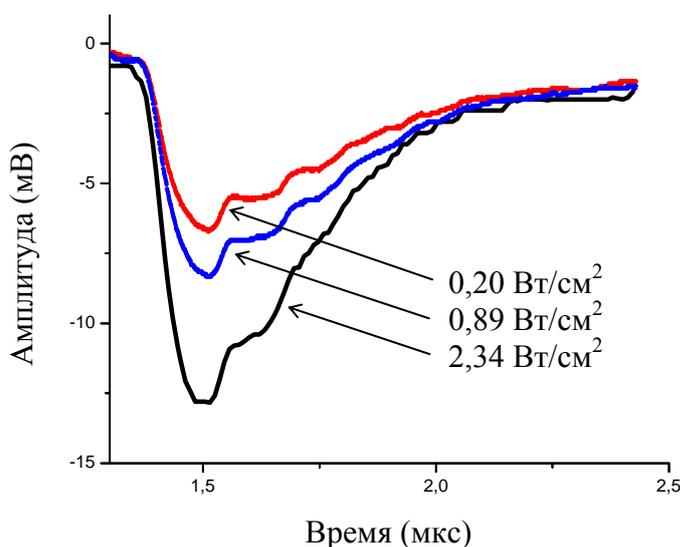


Рис. 3. Кинетические кривые сигнала затухания свободной поляризации при разных интенсивностях возбуждающего излучения

В конце параграфа приведен анализ расчетов явлений затухания свободной поляризации и оптических нутаций в рамках модели невзаимодействующих двухуровневых систем. Модель описывает переходы с правилом отбора $\Delta M = 0$, пренебрегает деполяризующими столкновениями, рассматривает излучение в виде плоских волн, а также считает электрическое поле однородным. Показано, что в пределе низкой интенсивности лазерного излучения сигналы затухания свободной поляризации

видны с хорошим контрастом. Предел высоких интенсивностей соответствует преобладанию сигнала оптических нутаций.

В параграфе 3.2 изложены результаты исследования столкновительной релаксации в газе $^{13}\text{CH}_3\text{F}$ методом фотонного эха. Показана неэкспоненциальная зависимость сигнала фотонного эха от задержки между первым и вторым импульсами электрического поля τ_{12} (рис. 4).

Из измерений сигнала фотонного эха в области малых (менее 1 мкс) задержек получено однородное уширение линии $\Gamma/p = 14,5 \pm 3$ МГц/торр, которое связано с неупругими столкновениями и согласуется с однородным уширением, измеренным методом двойного инфракрасного-микроволнового резонанса [5].

В параграфе 3.3 изложены результаты исследования столкновительной релаксации в газе $^{13}\text{CH}_3\text{F}$ методом стимулированного фотонного эха. Из результатов следует, что сигнал стимулированного фотонного эха затухает медленнее, чем сигнал фотонного эха (рис. 4), поскольку стимулированное эхо на интервале времени между вторым и третьим импульсами электрического поля τ_{23} нечувствительно к столкновениям с изменением скорости.

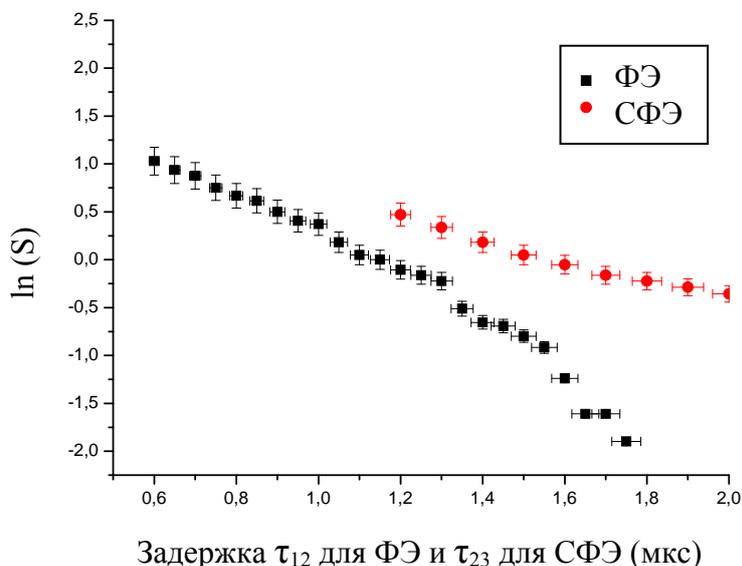


Рис. 4. Стимулированное фотонное эхо (СФЭ) как функция задержки τ_{23} и фотонное эхо (ФЭ) как функция задержки τ_{12} . Давление газа $^{13}\text{CH}_3\text{F}$ – 1,3 мТорр

В конце параграфа представлен обзор литературы по исследованию столкновительной релаксации в газе $^{13}\text{CH}_3\text{F}$ методом фотонного эха, а также другими методами. Скорости релаксации, приведенные в литературе и измеренные в диссертационной работе, сведены в таблицу.

В параграфе 3.4 изложены результаты исследования столкновительной релаксации в газе $^{13}\text{CH}_3\text{F}$ методом задержанных оптических нутаций. В начале параграфа даны условия экспериментов.

Методом штарковского переключения уровней молекулы $^{13}\text{CH}_3\text{F}$ были экспериментально исследованы сигналы задержанных оптических нутаций в чистом газе $^{13}\text{CH}_3\text{F}$, а также в его смесях с буферными газами. В качестве буферных газов для $^{13}\text{CH}_3\text{F}$ были использованы атомарные газы: He, Ne, Kr, а также неполярные молекулы N_2 , CO_2 .

Для обработки экспериментальных результатов (сигнал задержанных оптических нутаций как функция длительности импульса электрического поля) была предложена формула:

$$S(T_i) = e^{(-\Gamma_{\text{slow}} \cdot T_i)} \cdot S(T_{\text{max}}) - [S(T_{\text{max}}) - S(0)] \cdot e^{-(\Gamma + \Gamma_{\text{slow}}) \cdot T_i}, \quad (3)$$

где $S(T_i)$ – амплитуда второго сигнала; $S(T_{\text{max}})$ – этот же сигнал при максимально возможной длительности импульса T_i ; $S(0)$ – амплитуда первого сигнала; Γ_{slow} – медленная релаксация, соответствующая «размытию» столкновениями дырок Беннета; Γ – однородная ширина спектральной линии, которая определяется в данном случае неупругими столкновениями (вращательная релаксация). Основой для (3) послужила формула из работы [6] в которую был добавлен множитель, учитывающий диффузию в газе, содержащий Γ_{slow} . На рис. 5 показаны кинетические кривые сигнала задержанных оптических нутаций в смеси $^{13}\text{CH}_3\text{F}$ с буферным газом CO_2 (экспериментальная и рассчитанная по формуле (3)).

Выявлено, что сечения релаксации нарастают с ростом массы атомарного буфера. Скорость релаксации в чистом полярном газе существенно выше всех скоростей релаксации с атомарными и молекулярными буферами. Соответствующие результаты приведены в параграфе 3.4.

Кинетические кривые сигнала задержанных оптических нутаций при разных давлениях $^{13}\text{CH}_3\text{F}$ представлены на рис. 6.

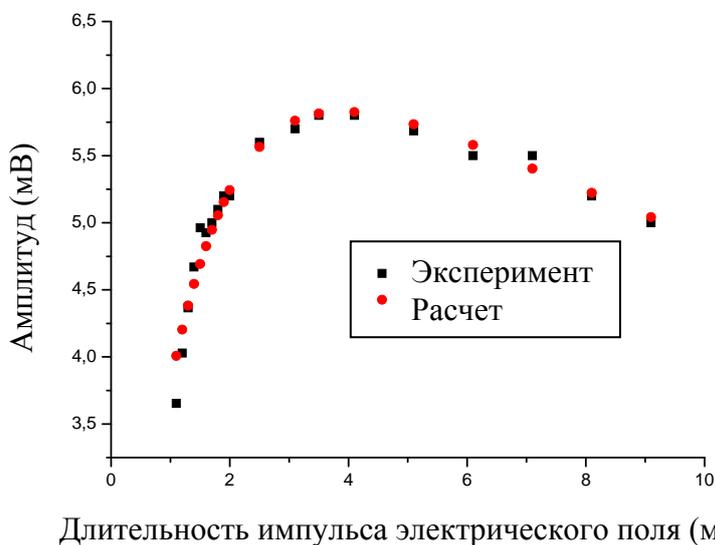


Рис. 5. Кинетические кривые сигнала задержанных оптических нутаций в смеси $^{13}\text{CH}_3\text{F}$ с буферным газом CO_2

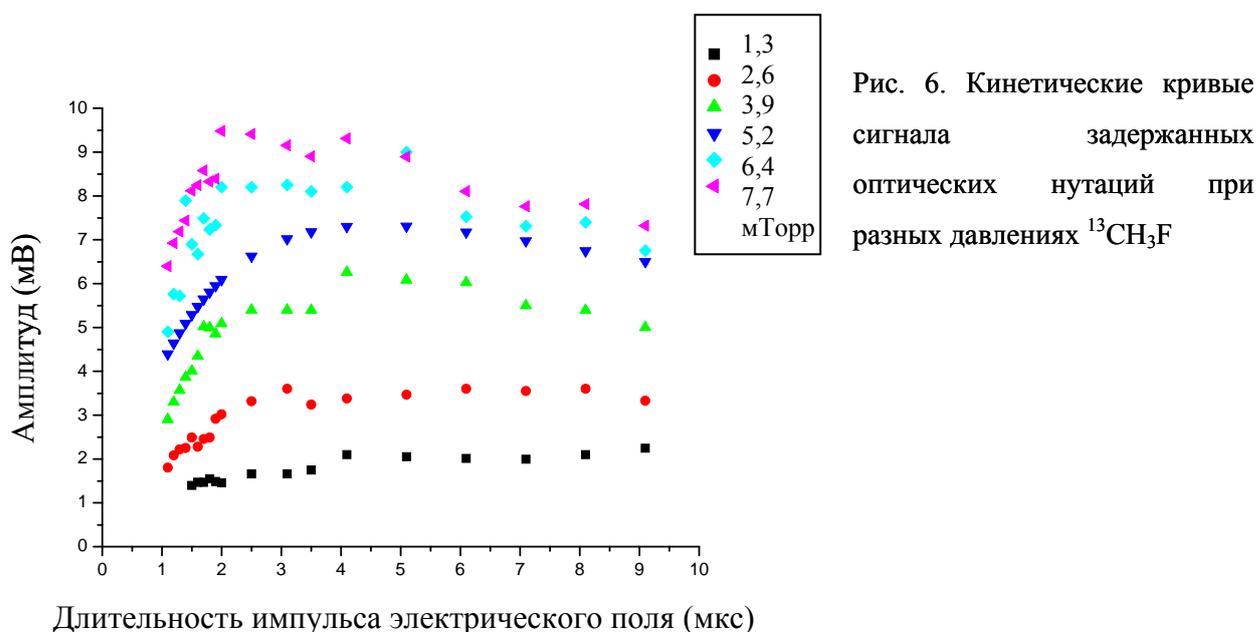


Рис. 6. Кинетические кривые сигнала задержанных оптических нутаций при разных давлениях $^{13}\text{CH}_3\text{F}$

Начальный участок кинетических кривых при разных давлениях $^{13}\text{CH}_3\text{F}$ определяет величину $\Gamma/p = 16,9 \pm 3,2$ МГц/Торр. Это значение хорошо согласуется с однородным уширением $\Gamma/p = 18,3 \pm 0,6$ МГц/Торр, найденным из сравнения спектров поглощения с теоретической формой линии (контур Фойгта) в работе [7]. Величина $\Gamma_{\text{slow}}/p = 1,1 \pm 0,1$ МГц/Торр.

Экспериментально полученные значения Γ/p , сечения неупругой релаксации σ_{exp} , радиусы ρ_{R-T} и соответствующие величины, взятые из монографии [8], приведены в таблице. В последней колонке указаны расстояния, соответствующие минимуму потенциала Леннарда-Джонса, определённые из данных по вязкости $^{\text{vis}}\rho_{g,\text{kin}}$, а также из данных определения второго вириального коэффициента $^{\text{virial}}\rho_{g,\text{kin}}$.

Буферный газ	M (а.е.м.)	$V_{\text{отн.}}$ (см/с)	Γ/p ($10^6 \text{c}^{-1} \text{Торр}^{-1}$)	$\sigma_{\text{exp}} (\text{Å})^2$	ρ_{R-T} (Å)	$^{\text{vis}}\rho_{g,\text{kin}} (\text{Å}) / ^{\text{virial}}\rho_{g,\text{kin}} (\text{Å})$
He	4	$1,33 \cdot 10^5$	$12 \pm 0,46$	$25,4 \pm 0,97$	2,8	2,58/2,63
Ne	20	$7,07 \cdot 10^4$	$11 \pm 0,736$	$43,9 \pm 2,93$	3,7	2,789 (2,858)/2,749 (2,78)
N_2	28	$6,39 \cdot 10^4$	30 ± 6	$132,2 \pm 26,4$	6,5	3,681 (3,749)/3,698 (3,71)
CO_2	44	$5,71 \cdot 10^4$	$11,1 \pm 0,82$	$54,8 \pm 4$	4,2	4/4,49
Kr	84	$5,07 \cdot 10^4$	$20 \pm 0,9$	$111,1 \pm 5$	5,9	3,61/3,6 (3,597)
$^{13}\text{CH}_3\text{F}$	35	$6,03 \cdot 10^4$	106 ± 20	$495,5 \pm 93,5$	12,6	$\sim 3,4$ (для $^{13}\text{CH}_3\text{Cl}$) 3,36 (для CH_3F)

Экспериментально полученное значение ρ_{R-T} существенно больше газокинетического сечения, указанного в последней колонке таблицы.

В газе $^{13}\text{CH}_3\text{F}$ были получены скорости релаксации Γ при разных напряженностях электрического поля, которые не показали существенной зависимости скорости релаксации от напряженности электрического поля в диапазоне 33 – 200 В/см. Этот результат находится в качественном согласии с расчетами В.А. Решетова [9] из которых следует, что лишь при напряженностях электрического поля менее 20 В/см может происходить перекрывание групп частиц, резонансных лазерному излучению в отсутствие (до подачи) электрического поля и при его включении. Также показано, что при использовании метода задержанных оптических нутаций измеренные скорости релаксации Γ совпадают в пределах погрешности измерений для интенсивностей от 0,12 до 1,11 Вт/см², а скорость релаксации Γ_{slow} нарастает с ростом интенсивности. Последнее вызвано уширением дырки Беннета из-за увеличения диапазона скоростей молекул взаимодействующих с излучением лазера.

В **Заключении** приведены основные результаты диссертационной работы:

1. Для сигналов затухания свободной поляризации в виде интерференционных пиков излучений, соответствующих разным магнитным переходам, период и ширина биений обратно пропорциональны напряженности электрического поля. Из зависимости частоты биений от напряженности электрического поля оценена взвешенная разность дипольных моментов $\delta = 0,15 \cdot d_0 - 0,1 \cdot d_1 = (7,27 \pm 0,8) \cdot 10^{-2}$ Д. С увеличением интенсивности возбуждающего излучения (от 0,2 до 2,34 Вт/см²) уменьшается число наблюдаемых интерференционных пиков затухания свободной поляризации, при этом нарастают сигналы оптических нутаций.
2. Амплитуда фотонного эха неэкспоненциально зависит от задержек между импульсами электрического поля. В области малых задержек (0,6 – 1,33 мкс) между импульсами электрического поля затухание эха определяется неупругими столкновениями. Это позволило измерить однородное уширение линии $\Gamma/p = 14,5 \pm 3$ МГц/Торр. В области больших задержек (более 1,33 мкс) между импульсами электрического поля дополнительный вклад в затухание эха дают упругие столкновения с изменением скорости.

Затухание сигнала стимулированного фотонного эха при увеличении задержки между вторым и третьим электрическими импульсами происходит существенно медленнее, чем затухание фотонного эха в области больших задержек (1,33 – 1,8 мкс).

Это свидетельствует о нечувствительности стимулированного фотонного эха к упругим столкновениям.

3. Метод задержанных оптических нутаций оказался более выигрышным с точки зрения отношения сигнал/шум для исследования релаксационных процессов, сформированных на вращательном переходе R(4,3) колебательной полосы 0-1 моды ν_3 газа $^{13}\text{CH}_3\text{F}$.

Предложена формула (3) для обработки зависимости сигналов задержанных оптических нутаций от длительности импульсов электрического поля. По этой формуле вычислены величины $\Gamma/p = 16,9 \pm 3,2$ МГц/Торр и $\Gamma_{\text{slow}}/p = 1,1 \pm 0,1$ МГц/Торр. Значение $\Gamma/p = 16,9 \pm 3,2$ МГц/Торр согласуется с однородным уширением $\Gamma/p = 18,3 \pm 0,6$ МГц/Торр, найденным в работе [7].

Экспериментально установлено, что при использовании метода задержанных оптических нутаций измеренные скорости релаксации Γ/p совпадают в пределах погрешности измерений для интенсивностей от 0,12 до 1,11 Вт/см² и в диапазоне напряжённостей электрического поля от 33 до 200 В/см.

Методом задержанных оптических нутаций измерены скорости столкновительной релаксации в смесях $^{13}\text{CH}_3\text{F}$ с буферными газами: He, Ne, Kr, N₂, CO₂. Скорость релаксации в чистом полярном газе существенно выше всех скоростей релаксации с атомарными и молекулярными буферами.

СПИСОК ОСНОВНЫХ ПУБЛИКАЦИЙ

1. Ледовских Д.В., Рубцова Н.Н., Хворостов Е.Б.. Биения в сигнале затухания свободной поляризации // XI международная молодежная научная школа «Когерентная оптика и оптическая спектроскопия», сборник статей, выпуск 11, Казань. 2007. С. 200-206.
2. Gol'dort V.G., Ledovskikh D.V., Khvorostov E.B., and Rubtsova N.N.. Beating in free polarization decay // Laser Phys. Lett. 2008. V. 5, № 3. P. 197–201.
3. Ледовских Д.В., Рубцова Н.Н., Хворостов Е.Б.. Биения в сигнале затухания свободной поляризации // Ученые записки казанского государственного университета, серия физико-математические науки, Казань. 2008. Т. 150, кн. 2. С. 166-172.
4. Рубцова Н.Н., Ледовских Д.В., Хворостов Е.Б., Гольдорт В.Г.. Задержанные оптические нутации в газе $^{13}\text{CH}_3\text{F}$ и его смесях с атомарными буферами // XIII международная молодежная научная школа «Когерентная оптика и оптическая спектроскопия», сборник статей, выпуск. 13, Казань. 2009. С. 183-185.

5. Rubtsova N.N., Gol'dort V.G., Ishchenko V.N., Kochubei S.A., Khvorostov E.B., Ledovskikh D.V., and Yevseyev I.V.. Velocity effects in atomic and molecular collisions: study by coherent transients // Laser Physics. 2010. V. 20, № 3, P. 568-572.
6. Рубцова Н.Н., Евсеев И.В., Решетов В.А., Гольдорт В.Г., Ищенко В.Н., Кочубей С.А., Ледовских Д.В., Хворостов Е.Б.. Влияние скорости поступательного движения активных частиц на свойства фотонного эхо // Известия РАН, сер. физ. 2010. Т. 74. С. 966-969.
7. Rubtsova N.N., Ledovskikh D.V., Reshetov V.A.. Collision relaxation in $^{13}\text{CH}_3\text{F}$ with buffers // Laser Physics Letters. 2010. V. 7, № 10, P. 734-738.

ЦИТИРУЕМАЯ ЛИТЕРАТУРА

1. Летохов В.С., Чеботаев В.П. Принципы нелинейной лазерной спектроскопии. Москва: Наука, 1975. – 250 с. Летохов В.С., Чеботаев В.П. Нелинейная лазерная спектроскопия сверхвысокого разрешения. Москва: Наука, физматлит, 1990. - 520 с.
2. Раутиан С.Г., Смирнов Г.И., Шалагин А.М. Нелинейные резонансы в спектрах атомов и молекул Новосибирск: Наука, 1979. – 420 с.
3. Brewer R.G. and Shoemaker R.L. Photo echo and optical nutation in molecules // Phys. Rev. Lett. – 1971. – V. 27, № 10. – 631 p.
4. Foster K. L., Stenholm S., and Brewer Richard G. Phys.Rev. A. – 1974. - V. 10. – 2318 p.
5. Jetter H., Pearson E.F., Norris C.L., McGurk J.C., Flygare, W. H. // J.Chem.Phys. - 1973. - V. 59. – 1796 p.
6. Berman P.R., Levy J.M., Brewer R.G. Coherent optical transient study of molecular collisions: Theory and observations // Phys. Rev. A. – 1975. – V. 11, № 3. – 1668 p.
7. Nagels B., Schuurman M., Chapovsky P. L., and Hermans L. J. F. Nuclear spin conversion in molecules: Experiments on $^{13}\text{CH}_3\text{F}$ support a mixing-of-states model // Phys. Rev. A. – 1996. – V. 54, №. 3. – 2050 p.
8. Гиршфельдер Дж., Кертисс Ч., Берд Р. Молекулярная теория газов и жидкостей. М.: Изд.ин.лит. - 1961.
9. Rubtsova N.N., Ledovskikh D.V., Reshetov V.A. “Collision relaxation in $^{13}\text{CH}_3\text{F}$ with buffers. Laser Physics Letters. - V. 7, № 10, - P. 734-738.