УДК 535.2

ОСОБЕННОСТИ ФОРМИРОВАНИЯ СТИМУЛИРОВАННОГО СВЕТОВОГО ЭХА В СИСТЕМЕ ДВИЖУЩИХСЯ ЧАСТИЦ

Л. А. Нефедьев и *В. В. Самарцев*

Разработана теория стимулированного светового эха в системе движущихся частиц. Показано, что столкновения с изменением скоростей частиц наиболее сильно влияют на интенсивность отклика стимулированного светового эха в случае, когда волновые векторы возбуждающих импульсов непараллельны.

В настоящее время методика светового эха и других оптических переходных явлений достаточно широко используется для исследования газовых сред. При этом одним из основных механизмов, влияющих на параметры откликов газовых систем при оптическом когерентном импульсном возбуждении, является движение частиц и их столкновения. Например, затухание амплитуды сигнала светового эха при варьировании интервала между возбуждающими импульсами не соответствует экспоненциальному закону $\exp(-t/T_2)$, где T_2 — время поперечной релаксации, а имеет вид $\exp(-\alpha t^3)$ для малых значений интервала t между возбуждающими световыми импульсами и $\exp(-\beta t)$ в случае больших интервалов. Причина этого заключается в том, что в газовых средах имеют место упругие столкновения частиц, при которых скорость их движения испытывает диффузию. Фазовые соотношения между отдельными «скоростными пакетами» в пределах линии нарушаются, а это в свою очередь приводит к уменьшению амплитуды эха с характерной временной зависимостью [1].

Представляется актуальным исследование влияния движения «рабочих частиц» и их столкновений с изменением скорости на характеристики стимулированного светового эха (ССЭ) [2]. ССЭ интересно тем, что волновой пространственный синхронизм для него может быть восстановлен при определенных углах между волновыми векторами возбуждающих световых импульсов [3]. А это в свою очередь означает, что если в среде имеется анизотропия в распределении параметров, характеризующих среду, то ССЭ может дать возможность исследовать эту анизотропию. С этой точки зрения можно подойти и к столкновениям с изменением скорости частиц. Так, если частотный спектр возбуждающих световых импульсов больше допплеровски уширенной линии газовой системы, то столкновения с изменением скорости частиц, вообще говоря, практически не приведут к уменьшению амплитуды ССЭ при варьировании времени подачи третьего импульса, так как перераспределение частиц по скоростям не приведет к изменению заселенностей уровней частиц. Однако перераспределение возбужденных частиц (с определенными фазами) по скоростям за счет столкновений приведет к возникновению анизотропии в распределении фаз возбужденных частиц. И именно информация о такой анизотропии может быть извлечена из сигналов ССЭ при непараллельных волновых векторах возбуждающих импульсов. В случае же, когда спектральная ширина импульсов много меньше ширины линии, диффузия скоростей частиц за счет их столкновений будет разрушать фазовую память системы. И даже в случае, когда векторы возбуждающих импульсов параллельны, должно наблюдаться уменьшение интенсивности откликов ССЭ. Надо отметить, что в этом случае исследование параметров столкновений с изменением скоростей частиц можно проводить с помощью угловой спектроскопии [4] в случае двухимпульсного эха, или путем изменения взаимной ориентации волновых векторов возбуждающих импульсов в случае трехимпульсного возбуждения. Причем второй способ, очевидно, более перспективен, так как не потребует аппаратуры, способной выполнять прецизионные измерения, как в [4].

1. Корректный подход к описанию оптических переходных явлений в газах прежде всего требует учета как допплеровского сдвига частот частиц, так и их положения в пространстве. Поэтому в данной работе мы используем метод расчета, аналогичный примененному в [5].

Кинетические уравнения для одночастичной матрицы плотности в первом порядке по $\Delta\mathbf{r}$, где $\Delta\mathbf{r}$ — смещение частицы относительно первоначального положения за время t, запишутся в виде

$$\left(\frac{\partial}{\partial t}+\frac{\partial\Delta\mathbf{r}}{\partial t}\frac{\partial}{\partial\mathbf{r}}\right)\rho_{nn}\left(1-\frac{1}{c}\frac{\partial\Delta r}{\partial t}\right)^{-1}=\sum_{n'}\left[D_{n'n}\left(\rho_{n'n'}-\frac{\partial\rho_{n'n'}}{\partial t}\frac{\Delta r}{c}-\frac{\partial\rho_{n'n'}}{\partial\mathbf{r}}\Delta\mathbf{r}\right)-\right.$$
$$\left.-D_{nn'}\left(\rho_{nn}-\frac{\partial\rho_{nn}}{\partial t}\frac{\Delta r}{c}-\frac{\partial\rho_{nn}}{\partial t}\Delta\mathbf{r}\right)\right]+\frac{1}{i\hbar}\sum_{n'}\left[\left(V_{nn'}-V_{nn'}\frac{\Delta r}{c}\frac{\partial}{\partial t}-V_{nn'}\Delta\mathbf{r}\frac{\partial}{\partial\mathbf{r}}-\frac{\partial V_{nn'}}{\partial t}\frac{\Delta r}{c}-\right.\right.$$
$$\left.\left.-\frac{\partial V_{nn'}}{\partial\mathbf{r}}\Delta\mathbf{r}\right)\rho_{n'n}-\left(V_{n'n}-V_{n'n}\frac{\Delta r}{c}\frac{\partial}{\partial t}-V_{n'n}\Delta r\frac{\partial}{\partial\mathbf{r}}-\frac{\partial V_{n'n}}{\partial t}\frac{\Delta r}{c}-\frac{\partial V_{n'n}}{\partial\mathbf{r}}\Delta\mathbf{r}\right)\rho_{nn'}\right],\qquad(1)$$

$$\left(\frac{\partial}{\partial t}+\frac{\partial\Delta\mathbf{r}}{\partial t}\frac{\partial}{\partial\mathbf{r}}\right)\rho_{nn'}\left(1-\frac{1}{c}\frac{\partial\Delta r}{\partial t}\right)^{-1}+i\omega_{nn'}\left(1-\frac{\Delta r}{c}\frac{\partial}{\partial t}-\Delta\mathbf{r}\frac{\partial}{\partial\mathbf{r}}\right)\rho_{nn'}=-\tau_{nn'}^{-1}\left(1-\frac{\Delta r}{c}\frac{\partial}{\partial t}-\right.$$
$$\left.-\Delta\mathbf{r}\frac{\partial}{\partial\mathbf{r}}\right)\rho_{nn'}+\frac{1}{i\hbar}\sum_{n''}\left[\left(V_{nn''}-V_{nn''}\frac{\Delta r}{c}\frac{\partial}{\partial t}-V_{nn''}\Delta\mathbf{r}\frac{\partial}{\partial\mathbf{r}}-\frac{\partial V_{nn''}}{\partial t}\frac{\Delta r}{c}-\frac{\partial V_{nn''}}{\partial\mathbf{r}}\Delta\mathbf{r}\right)\rho_{n''n'}-\right.$$
$$\left.-\left(V_{n''n'}-V_{n''n'}\frac{\Delta r}{c}\frac{\partial}{\partial t}-V_{n''n'}\Delta\mathbf{r}\frac{\partial}{\partial\mathbf{r}}-\frac{\partial V_{n''n'}}{\partial t}\frac{\Delta r}{c}-\frac{\partial V_{n''n'}}{\partial\mathbf{r}}\Delta\mathbf{r}\right)\rho_{nn''}\right],\qquad(2)$$

где D_{ij} — релаксационные константы диагональной части матрицы плотности, а τ_{ij} — недиагональной; V_{ij} — матричные элементы гамильтониана взаимодействия частицы с внешним полем; ω_{ij} — частота перехода $i-j$; c — скорость света в среде. В уравнениях (1) и (2) члены $\partial\rho/\partial\mathbf{r}$ учитывают перемещение частиц, а член $\left(1-\frac{1}{c}\frac{\partial\Delta r}{\partial t}\right)\omega_{ij}$ — изменение частот движущихся частиц. Члены же $\partial V/\partial t$ и $\partial V/\partial\mathbf{r}$ учитывают изменение поля, которое «чувствует» частица в зависимости от ее перемещения.

В данной работе мы рассмотрим случай, когда длительность возбуждающих импульсов много меньше времен релаксации, а их частотный спектр полностью перекрывает допплеровски уширенную линию. В этом случае движением частиц во время действия импульсов света можно пренебречь и расчет выполнить аналогично [6]. В промежутках между импульсами в случае двухуровневых частиц из (1) и (2) для матрицы плотности следуют уравнения

$$\frac{\partial\Delta}{\partial t}\left(1-\frac{\Delta z_\eta}{cT_1}\right)+\frac{\partial\Delta}{\partial z_\eta}\left(\frac{\partial}{\partial t}-\frac{1}{T_1}+\frac{1}{cT_1}\frac{\partial\Delta z_\eta}{\partial t}\right)\Delta z_\eta=(\Delta-\Delta_0)\left(\frac{1}{cT_1}\frac{\partial\Delta z_\eta}{\partial t}-\frac{1}{T_1}\right),\qquad(3)$$

$$\frac{\partial\rho_{mn}}{\partial t}\left[1-\left(i\omega_{mn}+\frac{1}{T_2}\right)\frac{\Delta z_\eta}{c}\right]+\frac{\partial\rho_{mn}}{\partial z_\eta}\left[\frac{\partial}{\partial t}-i\omega_{mn}-\frac{1}{T_2}+\frac{1}{c}\left(i\omega_{mn}+\frac{1}{T_2}\right)\frac{\partial\Delta z_\eta}{\partial t}\right]\Delta z_\eta=$$
$$=-\rho_{mn}\left(i\omega_{mn}+\frac{1}{T_2}\right)\left(1-\frac{1}{c}\frac{\partial\Delta z_\eta}{\partial t}\right)\quad(m,\ n=1,\ 2).\qquad(4)$$

Здесь $\Delta=\rho_{11}-\rho_{22}$; Δz_η — приращение координаты частицы в направлении η-го импульса света; T_1 и T_2 — времена продольной и поперечной релаксации; ω_{mn} — частота перехода $m-n$; $\Delta_0=\rho_{11}^0-\rho_{22}^0$.

Решение уравнения (3) на интервале $t_\eta \leqslant t \leqslant t_{\eta+1}$, где t_η — время воздействия на частицу η-го импульса света, имеет вид

$$\left.\begin{aligned} \rho_{11}(t) &\sim \rho_{11}(t_\eta;\ \xi_\eta)\exp\left\{-\frac{t-t_\eta}{T_1}\right\}, \\ \rho_{22}(t) &\sim \rho_{22}(t_\eta;\ \xi_\eta)\exp\left\{-\frac{t-t_\eta}{T_1}\right\}, \end{aligned}\right\} \tag{5}$$

$$\xi_\eta = z_\eta(t) - \Delta z_\eta(t-t_\eta) + \frac{1}{T_1}\int\limits_{t_\eta}^{t}\Delta z_\eta\left(1-\frac{\Delta z_\eta}{cT_1}\right)dt. \tag{5}$$

Аналогично решение уравнения (4) будет

$$\rho_{mn}(t) = \rho_{mn}(t_\eta;\ \xi'_\eta)\exp\left\{-\left(i\omega_{mn}+\frac{1}{T_2}\right)\left[t-t_\eta-\frac{1}{c}\Delta z_\eta(t-t_\eta)\right]\right\}, \tag{6}$$

$$\xi'_\eta = z(t) - \Delta z_\eta(t-t_\eta) + \frac{1}{T_2}\int\limits_{t_\eta}^{t}\Delta z_\eta dt.$$

2. Расчет по описанной схеме для моментов времени $t > t_3$ матричного элемента ρ_{12} дает

$$\begin{aligned} \rho_{12} \sim \exp\Big\{&-i\omega_{12}\left[(t-t_3-t_2+t_1)-\frac{1}{c}\left(\Delta z_3(t-t_3)-\Delta z_1(t_2-t_1)\right)\right] - \\ &- i\left(k_1\cos\widehat{\mathbf{k}_1\mathbf{k}_3} - k_2\cos\widehat{\mathbf{k}_2\mathbf{k}_3} - k_3\right)z_3(t) + ik_1\left[\Delta z_1(t_2-t_1)+\Delta z_2(t_3-t_2)\cos\widehat{\mathbf{k}_1\mathbf{k}_2} + \right. \\ &\left. + \Delta z_3(t-t_3)\cos\widehat{\mathbf{k}_1\mathbf{k}_3}\right] - ik_2\left[\Delta z_2(t_3-t_2)+\Delta z_3(t-t_3)\cos\widehat{\mathbf{k}_2\mathbf{k}_3}\right] - ik_3\Delta z_3(t-t_3) - \\ &- \frac{ik_1}{T_2}\int\limits_{t_1}^{t_2}\Delta z_1 dt - \frac{ik_1}{T_1}\int\limits_{t_2}^{t_3}\Delta z_2 dt\cos\widehat{\mathbf{k}_1\mathbf{k}_2} - \frac{ik_1}{T_2}\int\limits_{t_3}^{t}\Delta z_3 dt\cos\widehat{\mathbf{k}_1\mathbf{k}_3} + \\ &+ \frac{ik_2}{T_1}\int\limits_{t_2}^{t_3}\Delta z_2 dt + \frac{ik_2}{T_2}\int\limits_{t_3}^{t}\Delta z_3 dt\cos\widehat{\mathbf{k}_2\mathbf{k}_3} + \frac{ik_3}{T_2}\int\limits_{t_3}^{t}\Delta z_3 dt. \end{aligned} \tag{7}$$

Нетрудно видеть, что извлечение информации о движении частиц и их столкновениях возможно тремя способами;

а) варьирование интервала $t_3 - t_2$;

б) изменение углов между волновыми векторами возбуждающих импульсов (в этом случае вклад в затухание ССЭ дадут только столкновения, изменяющие скорость частиц, а затухание с временем T_1 не будет);

в) из нарушения пространственного синхронизма (аналогично [3]).

Если все векторы возбуждающих импульсов параллельны и нет столкновений между частицами, то из (7) следует

$$\rho_{12} \sim \left\langle \exp\left\{\frac{i\delta}{c}V(t-t_3-t_2+t_1)\right\}\right\rangle_V, \tag{8}$$

где V — проекция скорости частицы на направление распространения эхо, а усреднение проводится по V. Время появления отклика ССЭ будет

$$t = t_3 + t_2 - t_1. \tag{9}$$

В случае, когда векторы $\mathbf{k}_\eta$ непараллельны, но лежат в одной плоскости, имеем

$$\begin{aligned} \rho_{12} \sim \Big\langle \exp\Big\{&\frac{iV}{c}\left(\omega_{12}\cos\widehat{\mathbf{V}\mathbf{k}_3} - \omega\cos\widehat{\mathbf{V}\mathbf{k}_2}\right)\left[t - t_2\frac{\omega_{12}\cos\widehat{\mathbf{V}\mathbf{k}_1}-\omega\cos\widehat{\mathbf{V}\mathbf{k}_2}}{\omega_{12}\cos\widehat{\mathbf{V}\mathbf{k}_3}-\omega\cos\widehat{\mathbf{V}\mathbf{k}_2}} - \right. \\ &- t_3\frac{\delta\cos\widehat{\mathbf{V}\mathbf{k}_3}}{\omega_{12}\cos\widehat{\mathbf{V}\mathbf{k}_3}-\omega\cos\widehat{\mathbf{V}\mathbf{k}_2}} + t_1\frac{\delta\cos\widehat{\mathbf{V}\mathbf{k}_1}}{\omega_{12}\cos\widehat{\mathbf{V}\mathbf{k}_3}-\omega\cos\widehat{\mathbf{V}\mathbf{k}_2}} + \\ &\left. + (t_3-t_2)^2\frac{\omega\left(\cos\widehat{\mathbf{k}_2\mathbf{V}}-\cos\widehat{\mathbf{k}_1\mathbf{V}}\right)}{T_1\left(\omega_{12}\cos\widehat{\mathbf{V}\mathbf{k}_3}-\omega\cos\widehat{\mathbf{V}\mathbf{k}_2}\right)}\right]\Big\}\Big\rangle. \end{aligned} \tag{10}$$

Таким образом, время появления отклика является функцией взаимной ориентации волновых векторов и скоростей частиц. Поэтому по времени появления отклика ССЭ можно исследовать анизотропию в распределении частиц по скоростям.

Столкновения частиц с изменением скорости (при учете статистической независимости столкновений на разных временных интервалах) приводят к появлению в выражении для ρ_{12} множителя, зависящего от интервала t_3-t_2

$$\rho_{12}\sim\left\langle\exp\left\{i\left[k_1\Delta z_2(t_3-t_2)\cos\widehat{\mathbf{k}_1\mathbf{k}_2}-k_2\Delta z_2(t_3-t_2)-\frac{1}{T_1}\int\limits_{t_2}^{t_3}\Delta z_2dt\left(k_1\cos\widehat{\mathbf{k}_1\mathbf{k}_2}-k_2\right)\right]\right\}\right\rangle,\quad(11)$$

где усреднение проводится по столкновениям. Нетрудно видеть, что максимальное влияние на интенсивность ССЭ столкновения с изменением скорости будут оказывать, когда $\mathbf{k}_1\perp\mathbf{k}_2$. Это объясняется тем, что в рассматриваемом случае спектральная ширина возбуждающих импульсов больше ширины линии и мы по существу наблюдаем уменьшение интенсивности ССЭ за счет возникновения анизотропии в распределении возбужденных частиц с определенными фазами по скоростям, инициируемое столкновениями с изменением скоростей частиц. Заселенность же уровней частиц остается постоянной (не зависит от столкновений изменяющих скорости частиц), а ССЭ образуется из той части матрицы плотности системы, которая была диагональна после двухимпульсного возбуждения. Поэтому ССЭ несет прежде всего информацию о заселенности уровней, которая в данном случае от столкновений не зависит. И все же, когда $\mathbf{k}_1\parallel\mathbf{k}_2$, затухание сигнала остается, но здесь уже работает другой механизм: дело в том, что частица, возбужденная в момент времени t_1 импульсом с $k_1=\omega/c$, к моменту t_2 будет иметь прирост в скорости. Поэтому для того, чтобы она опять была возбуждена резонансно, из всех возможных значений k_2 необходимо выбрать значение $k_2=\frac{1}{c}(\omega+\Delta\omega)$.

Таким образом, $k_2-k_1=\frac{\Delta\omega}{c}=\frac{\Delta V\,(t_2-t_1)\,\omega}{c^2}$, где $\Delta V(t_2-t_1)$ — изменение скорости частицы на интервале t_2-t_1. Однако такой механизм затухания неэффективен.

Перепишем (11) в виде

$$\rho_{12}\sim\left\langle\exp\left\{i\frac{\omega}{c}\left(\cos\widehat{\mathbf{k}_1\mathbf{k}_2}-1\right)\left[\Delta z_2(t_3-t_2)-\frac{t_3-t_2}{T_1}\Delta z_2(\xi)\right]\right\}\right\rangle,$$

где $0<\xi<t_3-t_2$. Если Δz от времени зависит линейно, то можно записать

$$\rho_{12}\sim\left\langle\exp\left\{i\frac{\omega}{c}\left(\cos\widehat{\mathbf{k}_1\mathbf{k}_2}-1\right)\Delta z_2(t_3-t_2)\left(1-\frac{t_3-t_2}{2T_1}\right)\right\}\right\rangle.\quad(12)$$

Здесь $\Delta z_2(t_3-t_2)=\sum\limits_{j=1}^{N}\Delta V_j(T_j-t_2)$, T_j — время j-го столкновения, N — число столкновений на интервале t_3-t_2. Считая ΔV_j случайными величинами с распределением $g(\Delta V)$ и используя метод расчета, примененного в [6, 7], можно получить, что амплитуда ССЭ будет

$$E\sim\exp\left\{-\Gamma(t_3-t_2)\left[1-(t_3-t_2)^{-1}\int\limits_0^{t_3-t_2}d\tau'\tilde{g}\left[\frac{\omega}{c}\left(\cos\widehat{\mathbf{k}_1\mathbf{k}_2}-1\right)\left(1-\frac{t_3-t_2}{2T_1}\right)\tau'\right]\right]\right\},\quad(13)$$

где $\tilde{g}(y)=\int\limits_{-\infty}^{\infty}e^{-iy\Delta V}g(\Delta V)\,d\Delta V$, $y=\frac{\omega}{c}\left(\cos\widehat{\mathbf{k}_1\mathbf{k}_2}-1\right)\left(1-\frac{t_3-t_2}{2T_1}\right)\tau$, Γ — частота столкновений.

Разлагая $\tilde{g}(y)$ в ряд, для интенсивности ССЭ получим

$$I \sim \exp\left\{\frac{2c\Gamma}{\omega\left(\cos\widehat{\mathbf{k}_1\mathbf{k}_2}-1\right)\left(1-\frac{t_3-t_2}{2T_1}\right)}\sum_{m=1}^{\infty}\frac{(-1)^m}{(2m+1)!}\overline{(\Delta V)^{2m}}\times\right.$$
$$\left.\times\left[\frac{\omega}{c}\left(\cos\widehat{\mathbf{k}_1\mathbf{k}_2}-1\right)\left(1-\frac{t_3-t_2}{2T_1}\right)(t_3-t_2)\right]^{2m+1}\right\}, \qquad (14)$$

где $\overline{(\Delta V)^{2m}}$ — среднее значение $2m$ степени приращения скорости частицы в результате отдельного столкновения. Из (14) следует, что интенсивность ССЭ оказывается функцией взаимной ориентации векторов $\mathbf{k}_1$ и $\mathbf{k}_2$.

В плотных газах столкновения приводят к диффузионному движению частиц. Однако если на рассматриваемых интервалах времени сохраняется память о начальной скорости движения частицы, то будет наблюдаться и отклик ССЭ. В случае же плотной плазмы с $N > 10^{16}$ см$^{-3}$ в качестве механизма неоднородного уширения может работать механизм взаимодействия «рабочих частиц» с ионными микрополями. В этих случаях влияние диффузии на интенсивность ССЭ будет описываться функцией (11), усредненной по диффузионному движению

$$I \sim \exp\left\{-2(t_3-t_2)\left(k_1^2 D_{\mathbf{k}_1}+k_2^2 D_{\mathbf{k}_2}\right)\left[1+\frac{(t_3-t_2)^2}{4T_1^2}\right]\right\}, \qquad (15)$$

где $D_{\mathbf{k}_\eta}$ — коэффициент диффузии в направлении вектора $\mathbf{k}_\eta$.

Литература

[1] Нелинейная спектроскопия, гл. 3. «Мир», М., 1979.
[2] У. Х. Копвиллем. В сб.: Некоторые вопросы магнитной радиоспектроскопии и квантовой акустики, 99, Казань, 1968.
[3] С. М. Захаров, Э. А. Маныкин, Э. В. Онищенко. ЖЭТФ, *59*, 1307, 1970.
[4] В. В. Самарцев, Е. И. Штырков. Опт. и спектр., *47*, 225, 1979.
[5] Л. А. Нефедьев, В. В. Самарцев. Опт. и спектр., *46*, 537, 1979.
[6] Л. А. Нефедьев, В. В. Самарцев. Опт. и спектр., *47*, 220, 1979.
[7] A. Flusberg. Optics Commun., *29*, 123, 1979.

Поступило в Редакцию 15 января 1980 г.