

**ИЗУЧЕНИЕ РАЗЛИЧНЫХ КАНАЛОВ СТОЛКНОВИТЕЛЬНОЙ РЕЛАКСАЦИИ  
МЕТОДАМИ ФОТОННОГО И СТИМУЛИРОВАННОГО ФОТОННОГО ЭХА**

*Н. Н. Рубцова, Л. С. Василенко, Е. Б. Хворостов\**

*Институт физики полупроводников  
Сибирского отделения Российской академии наук  
630090, Новосибирск, Россия*

Поступила в редакцию 28 октября 1998 г.

Столкновительная релаксация в газе  $SF_6$  и его смесях с He и Xe исследована методом фотонного эха и стимулированного фотонного эха с точки зрения возможности выделения вкладов разных типов столкновений. Неэкспоненциальность кинетической кривой фотонного эха отчетливо регистрируется в чистом  $SF_6$ , слабее в смеси  $SF_6 + Xe$  и практически не видна при большом разбавлении  $SF_6$  гелием. Эти особенности удается объяснить на основании оценок критической величины задержки между возбуждающими импульсами (для которых неэкспоненциальность должна проявляться наиболее ярко), сделанных по экспериментальным данным. В чистом  $SF_6$  удается выделить вклад неупругого канала (вращательная релаксация) и вклад слабых столкновений. Успешное выделение каналов релаксации в смесях с буферными газами требует использования более тяжелого буфера и существенно лучшего временного разрешения. Показано, что данные по скоростям релаксации ориентации и выстраивания, полученные методом стимулированного фотонного эха могут служить оценкой сверху для скоростей неупругих процессов, недоступных измерению методом фотонного эха. Совместное использование методов фотонного и стимулированного фотонного эха позволило получить данные по сечениям упругого и неупругого рассеяния столкновительных пар  $SF_6-SF_6$ ,  $SF_6-Xe$  и  $SF_6-He$ .

PACS: 42.50.Md

## 1. ВВЕДЕНИЕ

Форма изолированной спектральной линии нейтрального газа определяется поступательным движением частиц (неоднородное уширение линии — эффект Доплера, сужение линии — эффект Дике), взаимодействием частиц с внешними электромагнитными полями или с нулевыми колебаниями поля (расщепление или сдвиг спектральной линии за счет динамического эффекта Штарка, радиационное уширение линии), а также взаимодействием частиц при столкновениях (столкновительное однородное уширение). Указанные процессы могут быть тесно взаимосвязаны, примером чему служат управление поступательным движением частиц с помощью лазерного излучения [1] (локализация атомов в поле стоячей волны), регистрация столкновительных переходов в поле нерезонансного излучения [2] (радиационные столкновения), наблюдение асимметрии доплеровского контура, возникающей из-за статистической зависимости столкновений и поступательного движения частиц [3].

\*E-mail: eugeny@isp.nsc.ru

Методы нелинейной лазерной (так называемой бездоплеровской) спектроскопии в значительной мере исключают вклад поступательного движения в уширение линии, а проведение экспериментов в слабых электромагнитных полях снижает вклад полевых эффектов до естественного радиационного уширения линии, которое для молекулярных колебательно-вращательных ИК-переходов невелико в силу низких вероятностей спонтанных переходов. Поэтому методы бездоплеровской спектроскопии молекул позволяют сконцентрировать исследования на однородном столкновительном уширении линии.

Столкновения изменяют внутреннее состояние активной (поглощающей или излучающей) частицы и/или состояние ее поступательного движения. В одном столкновении может измениться ряд параметров активной частицы, так что выделение отдельных типов столкновений становится проблематичным. Тем не менее, часто используется описание различаемых по конечному результату типов столкновений. Различают столкновения со сбоем фазы дипольного момента перехода, упругое рассеяние на малые углы (столкновения с изменением скорости поступательного движения), деполяризующие столкновения (ответственные за разрушение моментов поляризации, наведенных поляризованным излучением на вырожденных резонансных уровнях; эти столкновения характеризуют асимметрию потенциала взаимодействия частиц), а также неупругое рассеяние (в случае колебательно-вращательных переходов это, главным образом, вращательная релаксация).

Знание вкладов различных каналов столкновительной релаксации может быть полезным как при изучении особенностей потенциалов взаимодействия частиц, так и при исследовании формы спектральной линии. При использовании стационарных методов бездоплеровской спектроскопии информация о столкновениях содержится в форме однородно уширенной линии и выделение вкладов различных каналов может оказаться достаточно сложной задачей. Цель данной работы — проанализировать возможности применения нестационарной когерентной бездоплеровской спектроскопии к разделению упругого и неупругого каналов рассеяния молекул.

Данная работа выполнена методами фотонного и стимулированного фотонного эха. Когерентная природа этих явлений обеспечивает этим методам бездоплеровской спектроскопии ряд преимуществ по сравнению с методами насыщенного поглощения [4]: в условиях оптимального возбуждения эха методы когерентной спектроскопии обеспечивают существенное увеличение отношения сигнал/шум и совершенно свободны от полевых искажений.

## 2. ПРОЯВЛЕНИЕ РАЗЛИЧНЫХ МЕЖМОЛЕКУЛЯРНЫХ СТОЛКНОВЕНИЙ В ЯВЛЕНИЯХ ФОТОННОГО ЭХА

Когерентные переходные процессы, в том числе явления фотонного и стимулированного фотонного эха, вот уже более тридцати лет успешно используются для исследования релаксационных процессов в веществе. Для газовых сред теоретическое описание этих явлений хорошо развито [5, 6], что позволяет применять фотонное эхо и его модификации для экспериментальной проверки теоретических моделей столкновительного взаимодействия частиц.

Приведем качественную картину формирования эхо-откликов в газе двухуровневых атомов под действием однонаправленных импульсов излучения одинаковой частоты.

Современная теория фотонного эха рассматривает это явление в полуклассическом приближении. При этом состояние среды описывается с помощью матрицы плотности, учитывается движение частиц, а также релаксационные процессы. Взаимодействие с излучением рассматривается в дипольном приближении, поле излучения считается классическим. Динамика взаимодействия квантовой системы с резонансным излучением, как известно, определяется частотой Раби  $\chi = d \cdot \mathcal{E}_i / \hbar$ , которая характеризует дипольный момент перехода  $d$  и напряженность электрического поля резонансного электромагнитного излучения  $\mathcal{E}_i$   $i$ -го импульса. Если длительность импульса резонансного излучения достаточно мала, то под действием поля излучения двухуровневая система успевает совершить лишь часть периода осцилляций Раби. Это приводит к образованию неравновесных населенностей уровней и ненулевых значений поляризации среды. Важным параметром теории фотонного эха является площадь возбуждающего импульса

$$\theta_i = \int d \cdot \mathcal{E}_i(t) dt.$$

В случае формирования эха на узкой спектральной линии, т. е. когда ширина спектра возбуждающего излучения превышает доплеровскую ширину, наибольшее отклонение от равновесного состояния создается импульсом с площадью  $\theta_1 = \pi/2$ . В противоположном предельном случае формирования эха на широкой спектральной линии также существует оптимальная с точки зрения формирования сигнала фотонного эха площадь возбуждающего импульса.

В момент окончания возбуждающего импульса провзаимодействовавшие с возбуждающим излучением частицы, имеющие различные проекции скорости  $v_z$ , оказываются сфазированными. В результате в системе возникает макроскопическая поляризация, порождающая когерентное спонтанное излучение газового образца на частоте возбуждающего излучения. Однако такое состояние когерентности сохраняется недолго, поскольку частицы разных скоростных групп излучают на разных частотах, смещенных относительно центра линии  $\omega_0$  на величину  $\Delta\omega = \omega - \omega_0 = kv_z$  за счет эффекта Доплера. За время порядка длительности возбуждающего импульса после его окончания происходит линейное по времени нарастание разности доплеровских фаз  $\phi = kv_z t$  между частицами разных скоростей  $v_z$  (доплеровская расфазировка), что приводит к затуханию когерентного излучения среды. Это явление расфазировки может быть зарегистрировано в виде сигнала затухания свободной поляризации на фоне заднего фронта возбуждающего импульса. Указанная доплеровская расфазировка не приводит к необратимому затуханию возбуждения — микроскопическая поляризация отдельных частиц продолжает существовать.

Воздействие второго резонансного импульса (в случае формирования фотонного эха на узкой спектральной линии его оптимальная площадь равна  $\pi$ ) способно привести к инверсии знака фазы для каждой частицы. Дальнейшее нарастание доплеровских фаз по прежнему закону (пропорционально времени  $t$  и проекции скорости  $v_z$ ) создает условия для восстановления фазировки излучения тех частиц, которые испытывали воздействие второго возбуждающего импульса, в момент времени, примерно равный удвоенному времени задержки  $T_{12}$  между возбуждающими импульсами. В этот момент восстанавливается макроскопическая поляризация среды, спонтанное излучение частиц регистрируется как когерентное — так называемый сигнал фотонного эха. Длительность эхо-импульса также порядка длительности возбуждающих импульсов.

Мощность фотонного эха чувствительна как к неупругим столкновениям, в резуль-

тате которых частицы покидают уровни, участвующие в формировании фотонного эха, так и к упругим столкновениям, меняющим скорость поступательного движения (такое изменение сказывается на доплеровских фазах). Если при этом изменение продольной проекции скорости велико, что соответствует модели сильных столкновений, частицы, испытавшие такие столкновения, в дальнейшем не могут участвовать в формировании когерентного отклика. В случае малых изменений скорости (слабые столкновения) результат зависит от времени задержки между импульсами. Такие столкновения могут незначительно влиять на амплитуду эхо-отклика при малых задержках и вносят вклад в затухание фотонного эха лишь при больших задержках  $T_{12}$ . В результате наблюдается [7] неэкспоненциальная кинетика затухания фотонного эха с увеличением скорости релаксации для больших значений задержки. Затухание фотонного эха на начальном участке определяется неупругими процессами — вращательной релаксацией, а скорость затухания при больших задержках  $T_{12}$  характеризует суммарный вклад упругого и неупругого рассеяний.

Действие второго импульса может заключаться не только в обращении знака доплеровской фазы, которое эквивалентно скачку фазы на величину  $\Delta\phi = -2kv_z T_{12}$ . Вторым импульсом также преобразуют неравновесные значения недиагональных элементов матрицы плотности в диагональные, т. е. микроскопическую поляризацию в неравновесные населенности уровней. При этом значения накопленных к этому моменту доплеровских фаз  $kv_z T_{12}$  запоминаются в населенностях уровней и в течение долгого времени, определяемого процессами необратимой релаксации уровней, могут храниться в среде. Воздействие третьего импульса в виде бегущей волны, пришедшего с временем задержки  $T_{23}$  после второго импульса, способно преобразовать эти неравновесные населенности вновь в недиагональные компоненты матрицы плотности и по описанному ранее механизму скачка фаз создать условия для наблюдения когерентного эхо-отклика в момент времени  $t = T_{23} + 2T_{12}$  — явление стимулированного фотонного эха. В случае формирования эха на узкой спектральной линии оптимальные для амплитуды стимулированного фотонного эха площади всех трех импульсов равны  $\pi/2$ . Ясно, что стимулированное фотонное эхо должно быть чувствительно только к релаксационным процессам, воздействующим на населенности резонансных уровней в течение времени задержки  $T_{23}$  между вторым и третьим возбуждающими импульсами. Упругие слабые столкновения в этот промежуток времени не должны влиять на амплитуду стимулированного фотонного эха.

Эксперименты в молекулярном газе обычно используют вырожденные переходы (типичные значения углового момента  $J = 10-100$ ). Учет этого вырождения становится необходимым при исследовании поляризационных свойств когерентных откликов. С другой стороны, поляризационные особенности генерации эхо-сигналов открывают новые возможности в исследовании особенностей столкновительного взаимодействия. Так, в [8] предложено формировать стимулированное фотонное эхо при помощи световых импульсов со специально выбранными поляризациями, что позволяет изучать так называемые деполяризующие столкновения, которые представляют собой не что иное, как столкновения, разрушающие неравновесные поляризационные состояния (ориентацию, выстраивание и др.), сформированные на магнитных подуровнях вырожденных резонансных уровней. В соответствии с этим методом исследование кинетики затухания стимулированного фотонного эха в зависимости от времени задержки  $T_{23}$  позволяет определить для резонансных квантовых уровней три скорости столкновительного распада:  $\gamma^{(0)}$  — скорость релаксации населенности,  $\gamma^{(1)}$  — скорость разрушения ориентации

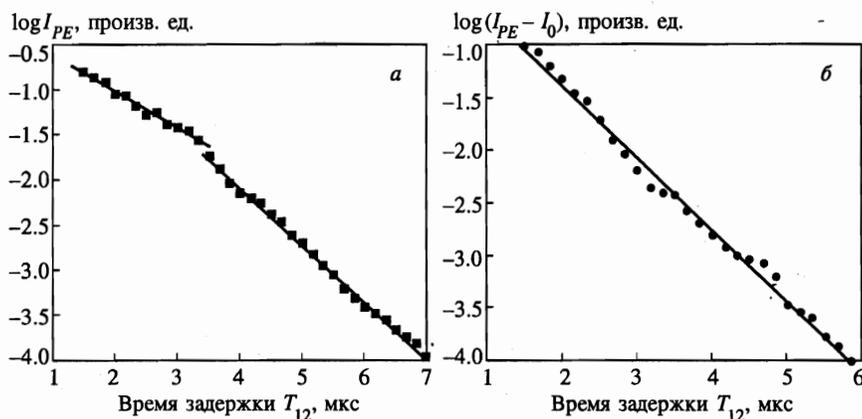
(ориентация уровня резонансным поляризованным излучением физически соответствует созданию в среде макроскопического магнито-дипольного момента) и  $\gamma^{(2)}$  — скорость разрушения выстраивания (выстраивание уровня соответствует наведению макроскопического электрического квадрупольного момента в образце). Различия в величинах этих релаксационных констант позволяют судить о наличии или отсутствии асимметрии потенциала взаимодействия сталкивающихся частиц.

Перечисленные особенности когерентных переходных процессов позволяют надеяться на принципиальную возможность раздельного изучения различных типов столкновений.

### 3. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

Техника эксперимента, основанная на применении излучения непрерывного узкополосного перестраиваемого по частоте  $\text{CO}_2$ -лазера, опорного лазера-гетеродина, системы электрооптических затворов для формирования импульсов, а также систем автоподстройки частоты лазеров и системы автоматизации измерений, подробно описана в [4]. Фотонное эхо исследовалось в диапазоне задержек  $T_{12}$  от 1.5 до 10 мкс в чистом газе  $\text{SF}_6$  и в его смесях с буферными газами He и Xe на переходе  $\text{P}(33) A_2^1$  колебательной моды  $\nu_3$ . Возбуждающие импульсы формировались электрооптическим затвором из излучения непрерывного  $\text{CO}_2$ -лазера с шириной линии порядка 10 кГц и с частотой генерации вблизи центра исследуемого перехода  $\text{SF}_6$ .

Рисунок (а) демонстрирует типичную кинетику мощности фотонного эха в газе  $\text{SF}_6$



*a* — Кинетика затухания сигнала фотонного эха в газе  $\text{SF}_6$  при давлении 2.5 мТорр. Постепенное изменение наклона кривой отражает возрастание роли упругого рассеяния на малые углы при увеличении времени задержки. Критическое время задержки примерно равно 3.3 мкс. Прямые проведены методом наименьших квадратов по точкам до и после задержки 3.3 мкс. *б* — Кинетика затухания сигнала фотонного эха в газовой смеси 2.5 мТорр  $\text{SF}_6$  + 3.5 мТорр He.  $I_0$  — интенсивность фотонного эха при том же давлении  $\text{SF}_6$ , но без буферного газа. Кривая может аппроксимироваться прямой линией, поскольку во всем доступном диапазоне задержек проявляются как упругие, так и неупругие столкновения. Прямая проведена методом наименьших квадратов по всем экспериментальным точкам

с нелинейным участком в начале кривой, свидетельствующим о неэкспоненциальности затухания эхо-сигнала. Как уже отмечалось в разд. 2, причиной такой неэкспоненциальности в области малых задержек между возбуждающими импульсами являются слабые столкновения. Величина дополнительной расфазировки ансамбля возбужденных частиц за счет слабых столкновений определяется выражением

$$\delta\phi = k\delta v_z T_{12},$$

где  $\delta v_z$  — изменение проекции скорости в результате столкновения. Если  $\delta\phi \ll 1$ , то можно пренебречь вкладом столкновений с изменением скорости в затухание фотонного эха и считать, что уменьшение эхо-сигнала с ростом задержки  $T_{12}$  определяется только неупругой релаксацией. С другой стороны, условие  $k\delta v_z T_c \approx \pi$  определяет критическую задержку между импульсами  $T_c$ , такую что для  $T_{12} > T_c$  уже невозможно пренебрегать вкладом слабых столкновений в затухание фотонного эха, и скорость затухания отражает суммарный вклад неупругих процессов и упругого рассеяния на малые углы. Таким образом, при  $T_{12} < T_c$  кинетика затухания фотонного эха определяется скоростью релаксации неравновесных населенностей уровней (вращательной релаксации)  $\gamma^{(0)}$ , а участок  $T_{12} > T_c$  позволяет измерить суммарную скорость релаксации

$$\Gamma_{tot} = \gamma^{(0)} + \Gamma_{vcc},$$

где  $\Gamma_{vcc}$  — скорость затухания сигнала фотонного эха за счет упругой релаксации (столкновений с изменением скорости — velocity changing collisions). В соответствии с такой интерпретацией в экспериментах по фотонному эху, выполненных для широкого диапазона задержек  $T_{12}$ , удастся определить обе скорости релаксации  $\gamma^{(0)}$  и  $\Gamma_{vcc}$  для чистого газа SF<sub>6</sub>.

Кинетика затухания фотонного эха в газовых смесях за счет столкновений резонансных молекул с частицами буферного газа несколько отлична от затухания в чистом газе. Если для смеси с ксеноном еще можно различить в начале кинетической кривой некоторое отклонение от экспоненциальности, то в столкновениях SF<sub>6</sub>–He (для доступных в эксперименте задержек  $T_{12} > 1.5$  мкс) наблюдается моноэкспоненциальный закон уменьшения мощности фотонного эха, как это демонстрирует рисунок (б).

Попытаемся оценить характерный угол рассеяния как дифракционный угол [9, 10], используя соотношение  $\theta = \lambda_D / \rho_W$ , где длина волны Де Бройля  $\lambda_D = \hbar / \mu v_{rel}$ ,  $\mu$  — приведенная масса партнеров по столкновению,  $v_{rel} = \sqrt{8k_B T / \pi \mu}$  — относительная средняя скорость движения. Радиус Вайсскопфа  $\rho_W$  можно определить из экспериментальных данных по формуле  $\rho_W \approx 0.365 \sqrt{\Gamma_{tot} / n_{buf} v_{rel}}$  [11, 12], где  $n_{buf}$  — плотность буферного газа. Рассчитанные таким образом углы дифракционного рассеяния можно использовать для оценки среднего изменения скорости поступательного движения при слабых столкновениях по соотношению  $\delta v_z \approx \theta v_{rel}$ . В свою очередь, значение изменения скорости при упругом рассеянии на малые углы позволит оценить величину  $T_c = \pi / k\delta v_z$  и сравнить ее с наблюдаемой в эксперименте.

В табл. 1 приведены значения  $\gamma^{(0)}$ ,  $\Gamma_{tot}$ ,  $\rho_W$ ,  $\lambda_D$ ,  $\theta$ ,  $\delta v$  и  $T_c$  для столкновительных пар SF<sub>6</sub>–SF<sub>6</sub>, SF<sub>6</sub>–He и SF<sub>6</sub>–Xe. Оценки критического значения задержки показывают хорошее совпадение с экспериментом в чистом газе, объясняют слабую неэкспоненциальность в смеси с ксеноном и ее отсутствие в смеси с гелием. Из полученных результатов можно заключить, что исследование кинетики затухания фотонного эха в широком диапазоне задержек позволяет выделить упругий и неупругий вклады, если в эксперименте доступны обе области задержек между возбуждающими импульсами:  $T_{12} < T_c$

и  $T_{12} > T_c$ . Это условие легче выполнить путем выбора партнера по столкновению с большей массой.

Таблица 1

Измеренные методом фотонного эха скорости неупругой релаксации  $\gamma^{(0)}$ , суммарные скорости упругих и неупругих процессов  $\Gamma_{tot}$ , оценки характерного угла дифракционного рассеяния и критических задержек  $T_c$

Партнеры по столкн.	$\gamma^{(0)}$ , $10^6 \text{ с}^{-1} \cdot \text{Торр}^{-1}$	$\Gamma_{tot}$ , $10^6 \text{ с}^{-1} \cdot \text{Торр}^{-1}$	$\rho_W$ , $\text{Å}$	$\lambda_D$ , $\text{Å}$	$\theta$ , $10^{-3}$ рад	$\delta v_z$ , см/с	$T_c$ , $10^{-6}$ с
SF <sub>6</sub> -SF <sub>6</sub>	$\leq 36 \pm 4.5$	$49.8 \pm 6.3$	8.3	0.03	3.6	145	3.4
SF <sub>6</sub> -Xe	не измерено	$27.6 \pm 4.7$	6.1	0.029	4.8	199	2.5
SF <sub>6</sub> -He	не измерено	$44.2 \pm 6.7$	3.8	0.13	3.5	4995	0.1

Другая возможность разделения типов столкновений предоставляется при использовании метода стимулированного фотонного эха. Стимулированное фотонное эхо формировалось в газе SF<sub>6</sub> на том же самом переходе  $P(33)A_2^1 0 \rightarrow 1$  колебательной моды  $\nu_3$  под действием импульсов резонансного излучения, вырезанных электрооптическим затвором из непрерывного линейно поляризованного излучения CO<sub>2</sub>-лазера, работающего на линии 10P(18). Дополнительный электрооптический кристалл, помещенный после формирующего затвора, позволял поворачивать на 90° линейную поляризацию любого из трех импульсов возбуждения, разделенных временами задержек  $T_{12}$  и  $T_{23}$ . Мощность (амплитуда) сигнала стимулированного фотонного эха, возникающего в момент времени  $t = 2T_{12} + T_{23}$ , достаточно сильно зависит от взаимной поляризации возбуждающих импульсов — она наибольшая для параллельных векторов поляризации всех трех импульсов возбуждения и минимальна при повороте плоскости поляризации первого импульса. Для увеличения чувствительности регистрации сигналов стимулированного фотонного эха, соответствующих поворотам поляризации первого или второго возбуждающих импульсов, была использована техника оптического гетеродина [13]. При этом рабочий лазер настраивался на центр перехода SF<sub>6</sub>, а частота лазера-гетеродина отстраивалась на фиксированную величину с помощью системы автоматической привязки частоты (frequency lock system). Величина детектируемого сигнала пропорциональна амплитуде электромагнитного поля когерентного отклика среды.

Выбранный колебательно-вращательный переход SF<sub>6</sub> позволяет использовать приближение больших угловых моментов [6, 8] ( $J$  — угловой момент уровня). Еще одно существенное упрощение связано с тем, что релаксационные характеристики верхнего и нижнего уровней ИК-переходов, как правило, близки по величине (подтверждением тому служит малый вклад в уширение линии столкновений со сбоем фазы [14, 15]).

Измеренные методом стимулированного фотонного эха [13] скорости столкновительного разрушения населенностей  $\gamma^{(0)}$ , ориентации  $\gamma^{(1)}$  и выстраивания  $\gamma^{(2)}$  приведены в табл. 2.

Для газовых смесей из-за малой величины эхо-сигналов измерить  $\gamma^{(0)}$  методом стимулированного фотонного эха не удалось. Однако измеренные значения скоростей релаксации ориентации и выстраивания вполне могут служить оценкой сверху для скорости неупругой релаксации  $\gamma^{(0)}$ , поскольку  $\gamma^{(\kappa)} = \gamma^{(0)} + \Gamma^{(\kappa)}$  [8], где именно положительная

Таблица 2

Результаты измерений методом стимулированного фотонного эха скоростей релаксации населенностей  $\gamma^{(0)}$ , ориентации  $\gamma^{(1)}$  и выстраивания  $\gamma^{(2)}$

Партнеры по столкн.	$\gamma^{(0)}$ , $\text{с}^{-1} \cdot \text{Торр}^{-1}$	$\gamma^{(1)}$ , $\text{с}^{-1} \cdot \text{Торр}^{-1}$	$\gamma^{(2)}$ , $\text{с}^{-1} \cdot \text{Торр}^{-1}$
SF <sub>6</sub> -SF <sub>6</sub>	$(29 \pm 3) \cdot 10^6$	$(32 \pm 3) \cdot 10^6$	$(38 \pm 3) \cdot 10^6$
SF <sub>6</sub> -Xe	не измерено	$(16 \pm 2) \cdot 10^6$	$(16 \pm 2) \cdot 10^6$
SF <sub>6</sub> -He	не измерено	$(36 \pm 4) \cdot 10^6$	$(47 \pm 4) \cdot 10^6$

аддитивная добавка  $\Gamma^{(\kappa)}$  описывает столкновительное разрушение мультипольных моментов, сформированных на вырожденных резонансных уровнях. Действительно, как это видно из сопоставления скоростей  $\gamma^{(\kappa)}$  для чистого SF<sub>6</sub>, приведенных в табл. 2, различия между скоростями распада населенности, ориентации и выстраивания лежат в пределах 10–25%.

Можно также обратить внимание на то, что значение  $\gamma^{(0)}$ , полученное в поляризационных по стимулированному фотонному эху экспериментах, оказалось меньше величины  $\gamma^{(0)}$ , полученной из начального участка кинетической кривой обычного фотонного эха ( $T_{12} < T_c$ ) и приведенной в табл. 1. Причина расхождения заключается в том, что абсолютно пренебрегать действием упругих столкновений даже для времен ( $0 < T_{12} < T_c$ ) нельзя, они всегда присутствуют. Поскольку их роль с увеличением  $T_{12}$  возрастает, можно сделать заключение о том, что расхождение в величинах  $\gamma^{(0)}$  было бы не таким заметным, если бы удалось продвинуться по кинетической кривой фотонного эха в область меньших задержек  $T_{12}$ ; что сделать технически очень сложно. К тому же при уменьшении задержки до величины, примерно равной длительности импульса, становится необходимым учитывать релаксацию во время действия импульса [16].

#### 4. ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

Данные табл. 1, 2 позволяют провести оценку сечений неупругой (вращательной) релаксации SF<sub>6</sub> при столкновениях с He и Xe, а также сечений рассеяния SF<sub>6</sub> на малые углы при столкновениях с этими буферами, используя соотношения  $\sigma_{rot} = \gamma^{(0)}/nv_{rel}$  и  $\sigma_{vcc} = (\Gamma_{tot} - \gamma^{(0)})/nv_{rel}$ . Результаты этих оценок приведены в табл. 3. Для сравнения приведены также газокинетические сечения для столкновительных пар, которые были получены из данных по вязкости и диффузии газов [17] в модели жестких сфер.

Из табл. 3 видно, что сечение упругого рассеяния тяжелой активной частицы SF<sub>6</sub> больше для столкновений с тяжелым буфером, чем для столкновений с буфером малой массы. То же утверждение верно и для сечений неупругих процессов.

Полученное нами в эксперименте значение  $\sigma_{rot}$  для столкновений SF<sub>6</sub>-SF<sub>6</sub> оказалось по крайней мере втрое больше рассчитанного из коэффициентов вязкости и диффузии газокинетического сечения  $\sigma_{kin}$ . Соотношение  $\sigma_{rot} \approx 3\sigma_{kin}$ , следующее из табл. 3, означает, что релаксация неравновесной населенности вращательного подуровня SF<sub>6</sub> в среднем происходит втрое чаще газокинетических столкновений. Этот удивитель-

Таблица 3

Полные сечения  $\sigma_{tot}$  и сечения упругого  $\sigma_{vcc}$  и неупругого  $\sigma_{rot}$  рассеяний, полученные путем сравнительного анализа экспериментальных данных методов фотонного и стимулированного фотонного эха. Для сравнения приведены оценки газокинетических сечений  $\sigma_{kin}$

Партнеры по столкн.	$\sigma_{vcc}, \text{Å}^2$	$\sigma_{rot}, \text{Å}^2$	$\sigma_{tot}, \text{Å}^2$	$\sigma_{kin}, \text{Å}^2$
SF <sub>6</sub> -SF <sub>6</sub>	$150 \leq \sigma_{vcc} \leq 185$	$350 \leq \sigma_{rot} \leq 385$	535	120
SF <sub>6</sub> -Xe	$120 \leq \sigma_{vcc} \leq 280$	$\leq 160$	280	95
SF <sub>6</sub> -He	$20 \leq \sigma_{vcc} \leq 105$	$\leq 85$	105	55

ный для неполярной молекулы факт может найти свое объяснение, если предположить наличие обменного механизма вращательной релаксации [14].

В рамках модели вращательной релаксации [18] среднее число газокинетических столкновений, необходимое для установления равновесия по вращательным состояниям  $Z_{rot}$ , может быть определено по формуле

$$Z_{rot} = \frac{3(1 + 2b)^2}{8b},$$

справедливой для молекул типа «шероховатых сфер» [18], к которым можно из общефизических соображений отнести и молекулу SF<sub>6</sub>. Здесь  $b = I/\mu a^2$ ,  $I$  — момент инерции активных частиц,  $\mu$  — приведенная масса,  $a$  — сумма молекулярных радиусов сталкивающихся частиц. Если сталкиваются одинаковые частицы (случай чистого газа SF<sub>6</sub>), то  $b = 1/2$ ,  $a Z_{rot} = 3$ , и, следовательно,  $\sigma_{rot} \approx \sigma_{kin}/3$ . Эта оценка на порядок отличается от полученного в наших экспериментах значения.

## 5. ВЫВОДЫ

Методы фотонного и стимулированного фотонного эха позволяют изучить разные типы столкновений: вращательно-неупругие столкновения, упругое рассеяние на малые углы и деполаризующие столкновения.

Исследование кинетики затухания фотонного эха в широком диапазоне задержек между возбуждающими импульсами продемонстрировало возможность выделения вкладов упругих и неупругих процессов в затухание сигнала фотонного эха, причем участки кинетической кривой фотонного эха с разными скоростями затухания более отчетливо различимы в чистом газе SF<sub>6</sub>. Для газовых смесей выделение упругих и неупругих процессов представляется возможным при использовании буферного газа с большой массой.

Для упругого и неупругого рассеяний SF<sub>6</sub> в газовых смесях сечения столкновений возрастают с ростом массы буферных частиц.

Применение метода стимулированного фотонного эха позволило исследовать деполаризующие столкновения посредством измерения скоростей релаксации населен-

ностей, ориентации и выстраивания. При этом измеренные методом стимулированного фотонного эха скорости релаксации ориентации и выстраивания уровней могут использоваться для оценки сверху скоростей неупругой релаксации, недоступных прямым измерениям методом фотонного эха в смесях SF<sub>6</sub> с буфером.

Совместный анализ данных, полученных методами фотонного и стимулированного фотонного эха, позволил получить полный набор сечений упругих и неупругих процессов для столкновительных пар SF<sub>6</sub>-SF<sub>6</sub>, SF<sub>6</sub>-Xe и SF<sub>6</sub>-He.

Авторы выражают признательность Российскому фонду фундаментальных исследований за поддержку работы (гранты № 97-02-18496 и 98-02-16390), а также с благодарностью отмечают поддержку государственной научной программы «Лазерная физика».

## Литература

1. В. Г. Миногин, В. С. Летохов, *Давление лазерного излучения на атомы*, Наука, Москва (1986).
2. С. И. Яковленко, УФН **136**(4), 593 (1982).
3. С. Г. Раутиан, И. И. Собельман, УФН **90**, 209 (1966).
4. L. S. Vasilenko and N. N. Rubtsova, *Laser Physics* **7**, 1021 (1997).
5. Л. Аллен, Дж. Эберли, *Оптический резонанс и двухуровневые атомы*, Мир, Москва (1978).
6. И. В. Евсеев, И. В. Ермаченко, В. В. Самарцев, *Деполаризующие столкновения в нелинейной электродинамике*, Наука, Москва (1992).
7. Л. С. Василенко, Н. Н. Рубцова, *Опт. и спектр.* **58**, 697 (1985).
8. И. В. Евсеев, В. М. Ермаченко, В. А. Решетов, ЖЭТФ **78**, 2213 (1980).
9. А. П. Кольченко, А. А. Пухов, С. Г. Раутиан, А. М. Шалагин, ЖЭТФ **63**, 1173 (1972).
10. V. P. Chebotayev and L. S. Vasilenko, *Progr. in Quant. Electr.* **8**(2) (1983).
11. А. П. Кольченко, С. Г. Раутиан, А. М. Шалагин, *Препринт ИЯФ СО АН СССР № 46*, Новосибирск (1972).
12. В. П. Кочанов, С. Г. Раутиан, А. М. Шалагин, ЖЭТФ **72**, 1358 (1977).
13. Л. С. Василенко, Н. Н. Рубцова, Е. Б. Хворостов, ЖЭТФ **113**, 829 (1998).
14. Н. Н. Рубцова, *Дисс.... докт. физ.-мат. наук*, Новосибирск (1997).
15. L. S. Vasilenko and N. N. Rubtsova, *Laser Physics* **7**, 903 (1997).
16. A. V. Durrant and J. Manners, *Optica Acta* **31**, 1167 (1984).
17. *Физические величины. Справочник*, под ред. И. С. Григорьева, Е. З. Мейлихова, Энергоатомиздат, Москва (1991).
18. А. Каллир, Дж. Ламберт, в кн. *Возбужденные частицы в химической кинетике*, Мир, Москва (1973), с. 214.