

ПРОГНОЗИРОВАНИЕ СКОРОСТИ РЕЛАКСАЦИИ ОСНОВНОГО СОСТОЯНИЯ АТОМОВ ПО СПЕКТРАМ ФЛУОРЕСЦЕНЦИИ С ПОМОЩЬЮ МАШИННОГО ОБУЧЕНИЯ

А.А. САРГСЯН¹, А.Ю. АЛЕКСАНИЯН^{2,3}, С.А. ПЕТРОСЯН⁴,
Э.А. ГАЗАЗЯН^{1,2,5*}, А.В. ПАПОЯН², Г.В. АСЦАТРЯН¹

¹Институт проблем информатики и автоматизации НАН Армении, Ереван, Армения

²Институт физических исследований НАН Армении, Аштарак, Армения

³Университет Бургундии Франш-Конте, Дижон, Франция

⁴Национальный политехнический университет, Ереван, Армения

⁵Ереванский государственный университет, Ереван, Армения

*e-mail: emil@sci4ever.org

(Поступила в редакцию 26 июля 2021 г.)

Рассмотрено внедрение методов машинного обучения для получения значений физических параметров экспериментально изучаемых атомных систем по зарегистрированным спектрам. Конкретной задачей было прогнозирование скорости релаксации подуровней основного состояния атомарных паров Rb по измеренным спектрам флуоресценции, что представляет собой типичную задачу регрессии. В качестве перспективных методов для обработки и прогнозирования физического поведения изучены линейные и нелинейные методы машинного обучения. Представлена оптимальная регрессивная модель, характеризующаяся высокой точностью и малым временем моделирования ключевых показателей функции.

1. Введение

Определение неизвестных параметров эксперимента из результатов измерений продолжает оставаться в числе приоритетных научных задач. Это в полной мере относится к спектроскопии, где частотный отклик среды зависит от многих параметров эксперимента, часть из которых неизвестна или определение их величины требует отдельной методики измерения. Большой интерес представляет, в частности, лазерная спектроскопия атомарных паров щелочных металлов, что обусловлено целым рядом важных практических применений в сенсорных технологиях, квантовых информационных технологиях, метрологии, лазерной технике и других областях.

В экспериментах атомной спектроскопии обычно регистрируются оптические сигналы (спектры) пропускания, отражения или флуоресценции атомарных паров при сканировании частоты лазерного излучения в окрестности атомных переходов, которые предоставляют ценную информацию о резонансном

взаимодействии лазерного излучения с атомной системой. Для определения физических параметров атомной системы, имеющих непосредственное воздействие на регистрируемые спектры, обычно проводится полное теоретическое моделирование задачи, на основе которого получаются расчетные спектры. При этом неизвестные параметры берутся как свободные («подгоночные») величины. Изменяя эти величины в ожидаемой области, получается наилучшее согласие теоретического спектра с экспериментальным, тем самым получаются значения неизвестных параметров.

Хотя эффективность такого подхода высока в случае единственного свободного параметра, проблемы могут возникнуть при наличии двух и более неизвестных параметров. Также на точность определения параметров существенно влияют факторы реального эксперимента, не заложенные в модель: нелинейность сканирования частоты, низкое отношение сигнал/шум, электронные, механические или акустические возмущения и т. д. Наконец, варьирование параметров модели для нахождения соответствия с экспериментом требует неприемлемо большого времени расчетов даже в случае оптимизации алгоритма, что ограничивает применимость метода при проектировании автономно работающих устройств [1,2]. Одним из эффективных и перспективных способов решения этой проблемы является применение машинного обучения (ML) для обработки сигналов, что может существенно способствовать реализации прикладного потенциала атомной спектроскопии.

Целью данной работы было определение параметра γ_c – скорости столкновительной релаксации подуровней основного состояния атомарных паров рубидия по измеренным спектрам флуоресценции с использованием методов машинного обучения (ML). Исследование проводится для случая резонансного возбуждения паров природного рубидия (изотопы ^{85}Rb и ^{87}Rb) при комнатной температуре на переходах сверхтонкой структуры линии D_2 в переходном (нестационарном) режиме взаимодействия (быстрое линейное сканирование лазерной частоты) [3,4]. В частности, используются контролируемые регрессионные модели машинного обучения (ML), с помощью которых можно предсказать параметр метки γ_c , основываясь на значениях множественных переменных предикторов для построения математического уравнения в виде функции независимых переменных [5]. Задействованы и оценены традиционные алгоритмы ML и подходы глубокого обучения с применением конкретных наборов данных, разных методик предварительной обработки данных и выделения признаков [6]. Модели проанализированы на наборах данных как с параметрами, соответствующими диапазону обучающих данных, так и существенно выходящими из этого диапазона. Ключевыми критериями для выбора модели являются наибольшая результативность (наилучшие показатели) для всех тестовых наборов данных и высокая эффективность использования ресурсов, включая общее энергопотребление процессора и время моделирования.

2. Математическое моделирование

Теоретическое моделирование спектров флуоресценции при возбуждении паров рубидия лазерным излучением с частотой, линейно сканируемой в прямом и обратном направлении (треугольная временная модуляция) в области

сверхтонкой структуры ^{85}Rb $F_g = 2, 3 \rightarrow F_e = 1, 2, 3, 4$ и ^{87}Rb $F_g = 1, 2 \rightarrow F_e = 0, 1, 2, 3$ атомной линии D_2 было проведено в работе [3]. Схематическая диаграмма данной атомной системы с указанием основных параметров расчета приведена на Рис.1. Состояния $|1\rangle$, $|2\rangle$ и $|3\rangle$, $|4\rangle$, $|5\rangle$, $|6\rangle$ соответствуют свертонким подуровням основного (F_g) и возбуждённого (F_e) уровней $5^2S_{1/2}$ и $5^2P_{3/2}$ соответственно.

Для этой системы зависящее от времени уравнение Лиувилля–фон Неймана [7] имеет вид

$$i\hbar \frac{\partial \rho}{\partial t} = [H, \rho] - \Lambda(\rho), \quad (1)$$

где ρ – 6×6 -мерная матрица плотности с зависящими от времени элементами $\rho_{ii}(t)$. Начальное условие для уравнения (1) – $\rho_{11}(t=0) + \rho_{22}(t=0) = 1$. Матрица $\Lambda(\rho)$ включает в себя все релаксационные процессы, имеющие место в системе:

$$\Lambda(\rho) = \begin{pmatrix} \Gamma^{(11)} & (\gamma_c + \gamma_{tot})\rho_{12} & \gamma_{tot}\rho_{13} & \gamma_{tot}\rho_{14} & \gamma_{tot}\rho_{15} & \gamma_{tot}\rho_{16} \\ (\gamma_c + \gamma_{tot})\rho_{21} & \Gamma^{(22)} & \gamma_{tot}\rho_{23} & \gamma_{tot}\rho_{24} & \gamma_{tot}\rho_{25} & \gamma_{tot}\rho_{26} \\ \gamma_{tot}\rho_{31} & \gamma_{tot}\rho_{32} & \Gamma^{(33)} & \gamma_{tot}\rho_{34} & \gamma_{tot}\rho_{35} & \gamma_{tot}\rho_{36} \\ \gamma_{tot}\rho_{41} & \gamma_{tot}\rho_{42} & \gamma_{tot}\rho_{43} & \Gamma^{(44)} & \gamma_{tot}\rho_{45} & \gamma_{tot}\rho_{46} \\ \gamma_{tot}\rho_{51} & \gamma_{tot}\rho_{52} & \gamma_{tot}\rho_{53} & \gamma_{tot}\rho_{54} & \Gamma^{(55)} & \gamma_{tot}\rho_{56} \\ \gamma_{tot}\rho_{61} & \gamma_{tot}\rho_{62} & \gamma_{tot}\rho_{63} & \gamma_{tot}\rho_{64} & \gamma_{tot}\rho_{65} & \Gamma^{(66)} \end{pmatrix}, \quad (2)$$

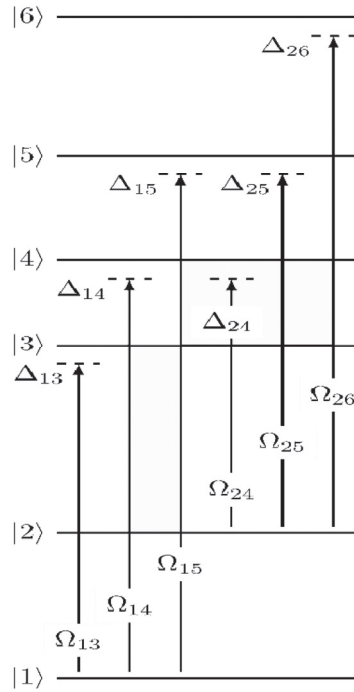


Рис.1. Схема теоретической модели с указанием основных параметров.

где $\Gamma^{(11)} = \gamma_c (\rho_{11} - \rho_{11}^0) - \Gamma_{31}\rho_{33} - \Gamma_{41}\rho_{44} - \Gamma_{51}\rho_{55}$, $\Gamma^{(22)} = \gamma_c (\rho_{22} - \rho_{22}^0) - \Gamma_{42}\rho_{44}$,
 $-\Gamma_{52}\rho_{55} - \Gamma_{62}\rho_{66}$, $\Gamma^{(33)} = (\Gamma_{31} + \gamma_c)\rho_{33}$, $\Gamma^{(44)} = (\Gamma_{41} + \Gamma_{42} + \gamma_c)\rho_{44}$,
 $\Gamma^{(55)} = (\Gamma_{51} + \Gamma_{52} + \gamma_c)\rho_{55}$, $\Gamma^{(66)} = (\Gamma_{62} + \gamma_c)\rho_{66}$, Γ_{ij} – скорости естественного распада возбуждённых подуровней; γ_{tot} – общее уширение, включающее радиационное и столкновительное уширение, спектральную ширину лазерного излучения, а также неоднородную доплеровскую ширину (доминирующий вклад), и γ_c – скорость релаксации подуровней основного состояния к равновесному состоянию, определяемая в основном столкновениями атомов со стенками ячейки. Определение значения этого параметра из анализа зарегистрированных спектров и является целью данной работы: значения всех других параметров известны с достаточно высокой точностью.

Зависящий от времени гамильтониан для этой системы имеет следующий вид:

$$H = \begin{pmatrix} 0 & 0 & \Omega_{13}e^{-i\Delta_{13}(t)t} & \Omega_{14}e^{-i\Delta_{14}(t)t} & \Omega_{15}e^{-i\Delta_{15}(t)t} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \Omega_{24}e^{-i\Delta_{24}(t)t} & \Omega_{25}e^{-i\Delta_{25}(t)t} & \Omega_{26}e^{-i\Delta_{26}(t)t} \\ \Omega_{13}e^{i\Delta_{13}(t)t} & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ \Omega_{14}e^{i\Delta_{14}(t)t} & \Omega_{24}e^{i\Delta_{24}(t)t} & 0 & 0 & 0 & 0 \\ \Omega_{15}e^{i\Delta_{15}(t)t} & \Omega_{25}e^{i\Delta_{25}(t)t} & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \Omega_{26}e^{i\Delta_{26}(t)t} & 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}, \quad (3)$$

где Ω_{ij} – частота Раби, а Δ_{ij} – однофотонная расстройка сканируемого лазерного поля от атомного резонанса. Периодическая треугольная временная модуляция частоты лазерного излучения (последовательное линейное увеличение и уменьшение частоты) представляется выражением:

$$\Delta_{ij}(t) = \Delta_{ij}^0 + \frac{\Delta}{\pi} \arcsin(\cos(2\pi f_s t)), \quad (4)$$

где Δ – спектральный диапазон сканирования, f_s – частота модуляции, $i = 1, 2$, а $j = 3, 4, 5, 6$ (см. Рис.1).

3. Данные

Набор данных можно получить синтетически на теоретической основе флуоресценции на сверхтонких переходах [3]. Существуют 3 набора данных:

- Core – основной набор данных, на котором проводится обучение. До тренировки модели Core разделяется на тестовые и тренировочные группы, где тренировочный используется для тренировки, а тестовой для оценки производительности и эффективности модели;
- Test₁ – используется для оценки модели, сгенерирован на основе параметров различающихся от Core;
- Test₂ – используется для оценки модели, сгенерирован на основе параметров различающихся от Core и Test₁.

Набор данных Core, на котором проводится обучение, состоит из 990

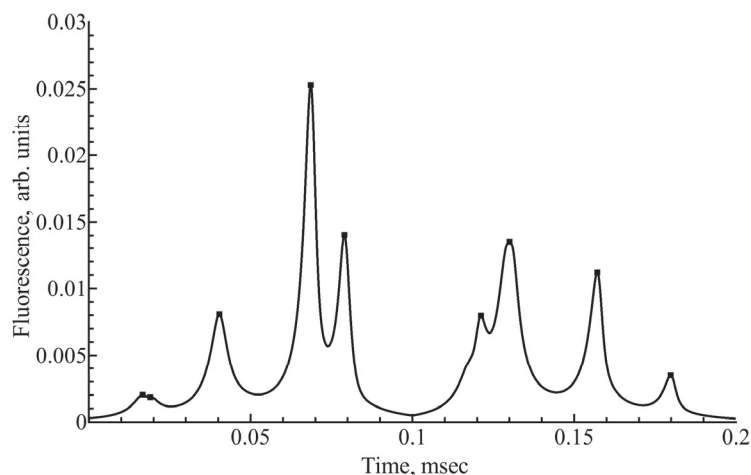


Рис.2. Зависимость флуоресценции от времени (чёрными точками обозначены пиковые значения).

наблюдений и 20000 точечных значений флуоресценции на каждое наблюдение (Рис.2). Одна половина этих значений соответствует ^{85}Rb , а другая – ^{87}Rb изотопам. Основными параметрами, регулирующими форму полученных данных, являются f_s , Ω и γ_c . В Табл.1 представлены конкретные диапазоны этих параметров, на основе которых получаются наборы данных Core и Test. Наборы данных Test используются для оценки эффективности и обобщаемости модели.

Табл.1. Параметры и диапазоны наборов данных Core, Test₁ и Test₂

Dataset	Диапазоны параметров		
	f_s	Ω	γ_c
Core	2500, 5000, 10000	0.348–0.352, 0.268–0.272, 0.198–0.202	1/800–1/1200
Test ₁	2500, 5000, 10000	0.342–0.347 и 0.353–0.358, 0.262–0.267 и 0.273–0.278, 0.192–0.197 и 0.203–0.208	1/500–1/750
Test ₂	7000	0.348–0.352, 0.268–0.272, 0.198–0.202	1/800–1/1200

Набор данных Test₁ содержит 90 наблюдений. Диапазоны параметров Ω и γ_c , на основе которых были сгенерированы эти наблюдения, различаются от диапазонов Core. Набор данных Test₂ состоит из 330 наблюдений с фиксированной частотой 7000 Hz.

4. Методология

Прогноз γ_c – это стандартная задача регрессии для оценки общего правила (функции), которое максимально точно показывает связь между флуоресценцией и необходимыми параметрами. Для решения задачи разработаны и

изучены несколько методов как традиционного машинного обучения, так и глубокого обучения. Каждая модель получена после предварительной обработки данных. В экспериментах использованы объединённые знания из области физики и машинного обучения.

На основе доменных знаний были извлечены значимые признаки, например отношение соответствующих точек вершин, благодаря чему улучшилась точность модели. В экспериментах был применен анализ основных компонентов данных (РСА) в ходе предварительной обработки [8]. Это помогло уменьшить размер данных и извлечь ценные компоненты.

Основной набор данных Core делится на подгруппы с соотношением 80% на 20%, где первая подгруппа используется для тренировки, а остальная часть – для оценки. Помимо оценки функции модели по основным тестовым данным, выполняются прогнозы по наборам данных тестирования $Test_1$ и $Test_2$. Они проводятся с целью оценить обобщаемость предлагаемой модели, поскольку каждый из двух тестовых наборов данных имеет параметры с диапазонами, отличающимися от основного набора данных. Следовательно, если модель может хорошо функционировать не только на основных тестовых данных, но и на двух других, то можно утверждать, что правило, установленное в результате обучения, включает основные ассоциации системы. Основными метриками, используемые для оценки модели, являются скорректированная оценка R-квадрата (R^2), среднеквадратичная ошибка (MSE) и средняя абсолютная ошибка (MAE) [8,9].

Помимо оценки качественной способности модели прогнозировать, мы также измеряем ее функцию по аспектам использования вычислительных ресурсов. Для моделей ML вычисляются необходимые вычислительные и временные ресурсы для процесса обучения. Результаты для каждой модели сравниваются друг с другом и с результатами, полученные стандартным алгоритмическим методом.

5. Результаты

Проведена серия экспериментов на нескольких моделях и алгоритмах с различной предварительной обработкой, включая глубокие нейронные сети. Однако простейшая модель, линейная регрессия [5,6,8,10], показала наилучшие результаты точности прогноза и потребления ресурсов.

Табл.2. Линейная регрессия на вершинах и данные по соотношениям пиковых значений

	R^2	adj R^2	MAE	MSE	MinAE	MaxAE
Train	0.997172	0.997121	0.000006	5.05×10^{-11}	1.09×10^{-8}	0.00002
Test	0.997168	0.996951	0.000006	4.79×10^{-11}	6.49×10^{-8}	0.00002
Test ₁	0.751333	0.704915	0.000083	1.66×10^{-8}	1.15×10^{-8}	0.000412
Test ₂	0.980085	0.9792	0.000015	3.52×10^{-10}	2.48×10^{-8}	0.000044

Результаты модели линейной регрессии по двум различно построенным данным представлены в таблицах 2 и 3. В первом случае вычисляются вершины спектров флуоресценции и добавляются отношения некоторых вершин (Рис.1). Точность модели вполне приемлема с достаточной среднеквадратичной ошибкой и R-квадратичными оценками по всем данным теста. Данные Test₁ показывают не лучшие результаты.

Табл.3. Линейная регрессия на вершинах и данные по соотношениям вершин с помощью PCA

	R ²	adjR ²	MAE	MSE	MinAE	MaxAE
Train	0.999778	0.999769	2.0×10^{-6}	3.96×10^{-12}	4.00×10^{-10}	0.000008
Test	0.99976	0.999717	2.0×10^{-6}	4.06×10^{-12}	8.73×10^{-9}	0.000006
Test ₁	0.947109	0.920215	3.7×10^{-5}	3.53×10^{-9}	4.34×10^{-7}	0.000201
Test ₂	0.989849	0.98883	9.0×10^{-6}	1.79×10^{-10}	1.76×10^{-8}	0.000043

Для улучшения показателей во втором случае, во избежание потери информации, включаются все точечные данные флуоресценции. К этим данным добавляются также коэффициенты пиковых значений. Поскольку размеры здесь слишком велики, использован анализ основных компонентов (PCA) [9], и выбраны топ 30 главных компонентов. В результате получены лучшие показатели для всех наборов данных, включая Test₁.

Показатели MSE довольно малы, и на Рис.3 видно, что распределение ошибки Test ближе к нулю, что является хорошим показателем. Метрика MAE показывает, что средний результат имеет ошибку $\pm 10^{-6}$. Поскольку показатели

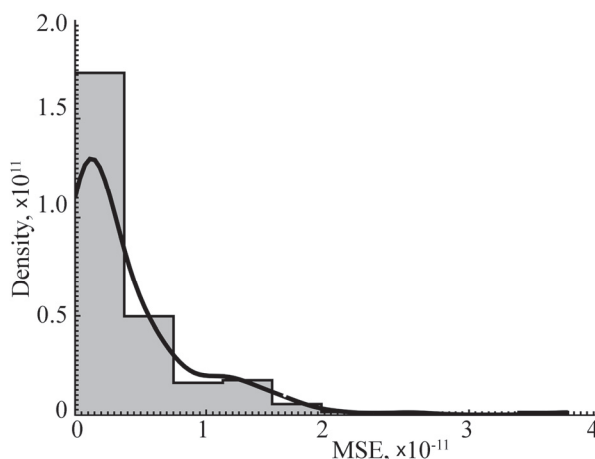


Рис.3. Гистограмма ошибки MSE для тестовых данных. Черная линия показывает линию оценки плотности ядра, которая аппроксимирует распределение ошибки.

наборов данных Train и всех Test хорошие, можно сделать вывод об отсутствии переоснащения.

Рис.4 показывает эффективность моделирования предложенного метода с меньшей вычислительной мощностью и быстрой скоростью работы (в пределах нескольких секунд). Обучение первой модели занимает около двух миллисекунд, а второй – около 1 секунды. Эти цифры значительно ниже при выполнении стандартных методов поиска, которые обычно занимают несколько минут.

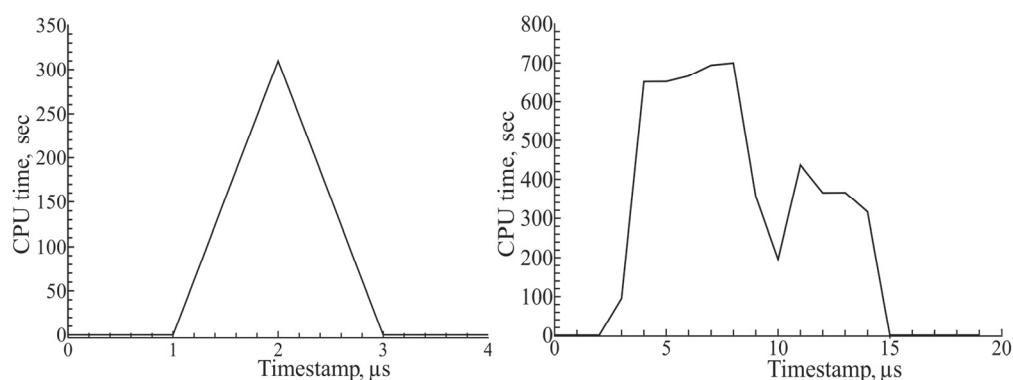


Рис.4. Потребление времени ЦП на каждый интервал для обучения первой (левой) и второй (правой) моделей.

6. Заключение

По сравнению с традиционными методами решения физических задач, требующих больших усилий и вычислительных ресурсов, методы машинного обучения отличаются более высокой эффективностью, результативностью и быстродействием. Исследование показывает, что с помощью методов машинного обучения можно за короткое время получить результаты с высокой точностью. Мы планируем исследовать новые методы [11] и алгоритмы с целью найти эффективный способ оптимизации и расширения предлагаемой регрессионной модели.

Артур Алексанян выражает благодарность высшей школе EUR EIPHI за CO.17049.PAC.AN финансирования. Статья посвящена памяти Грайра Азизбеяна.

ЛИТЕРАТУРА

1. E. Klinger. J. Contemp. Phys., **53**, 313 (2018).
2. E. Klinger, H. Azizbekyan, A. Sargsyan, C. Leroy, D. Sarkisyan, A. Papoyan. Appl. Opt., **59**, 2231 (2020).
3. A. Aleksanyan, S. Shmavonyan, E. Gazazyan, A. Khanbekyan, H. Azizbekyan, M. Movsisyan, A. Papoyan. J. Opt. Soc. Am. B, **37**, 203 (2020).
4. E.A. Gazazyan. J. Contemp. Phys., **3**, 1 (2008).

5. **T. Hastie, R. Tibshirani, J. Friedman.** The elements of statistical learning: data mining, inference, and prediction, Springer Series in Statistics, 2001.
6. **M.B. Christopher.** Pattern recognition and machine learning, Springer, 2006.
7. **K. Blum.** Density matrix theory and applications, Springer Series on Atomic, Optical, and Plasma Physics, 2012.
8. **A.E. Hoerl, R. Kennard.** Technometrics, **12**, 55 (1970).
9. **H. Hotelling.** J. Educ. Psychol., **24**, 417 (1933).
10. **G. Shieh.** Organ. Res. Methods, **11**, 387 (2008).
11. **H. Astsatryan, W. Narsisian, A. Kocharyan, G. Da Costa, A. Hankel, A. Oleksiak.** Concurr. Comput.: Pract. Exp., **29**, 1 (2017).

ԱՏՈՄՆԵՐԻ ՀԻՄՆԱԿԱՆ ՎԻՃԱԿԻ ՌԵԼԱՔՍԱՑՄԱՆ ԱՐԱԳՈՒԹՅԱՆ
ԿԱՆԽԱԳՈՒՇԱԿՈՒՄԸ ՖԼՈՒՈՐԵՍԵՆՑԻ ՍՊԵԿՏՐԵՐԻՑ՝
ՄԵՔԵՆԱՅԱԿԱՆ ՈՒՍՈՒՑՄԱՆ ՄԻՋՈՑՈՎ

Ա.Ա. ՍԱՐԳՍՅԱՆ, Ա.ՅՆԼ. ԱԼԵՔՍԱՆՅԱՆ, Ս.Ա. ՊԵՏՐՈՍՅԱՆ,
Է.Ա. ԳԱԶԱԶՅԱՆ, Ա.Վ. ՊԱՊՈՅԱՆ, Հ.Վ. ԱՍՏԱՏՐՅԱՆ

Դիտարկված է գիտափորձում հետազոտվող ատոմական համակարգի գրանցված սպեկտրներից ֆիզիկական բնութագրերի արժեքների ստացման համար մեքենայական ուսուցման մեթոդների ներդրումը: Աշխատանքի մասնավոր խնդիրն է Rb ատոմական գոլորշու հիմնական վիճակի ենթամակարդակների ռելաքսացման արագության կանխագուշակումը՝ չափված ֆլուորեսցենցի սպեկտրներից, ինչը հանդիսանում է ռեգրեսիայի տիպիկ խնդիր: Որպես հեռանկարային ֆիզիկական վարքի մշակման և կանխատեսման մեթոդներ են դիտարկվել մեքենայական ուսուցման գծային և ոչ գծային եղանակները: Ներկայացված է օպտիմալ ռեգրեսիայի մոդել, որը բնութագրվում է մեծ ճշտությամբ և ֆունկցիայի հիմնական ցուցանիշների մոդելավորման բարձր արագությամբ:

PREDICTION OF ATOMIC GROUND STATE RELAXATION RATE FROM FLUORESCENCE SPECTRA USING MACHINE LEARNING

A.A. SARGSYAN, A.Yu. ALEKSANYAN, S.A. PETROSYAN,
E.A. GAZAZYAN, A.V. PAPOYAN, H.V. ASTSATRYAN

We consider implementation of machine learning methods to retrieve the values of the physical parameters of experimentally studied atomic systems from the recorded spectra. The specific task was to predict the relaxation rate of the ground state sublevels of Rb atomic vapor from the measured fluorescence spectra, which is a typical regression problem. Linear and nonlinear machine learning methods have been studied as promising methods for processing and predicting physical behavior. An optimal regression model is presented, which is characterized by high accuracy and short modeling time for the key indicators of the function.