

*Письма в ЖЭТФ, том 19, вып. 7, стр. 474 – 478*

*5 апреля 1974 г.*

**ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЕ ИССЛЕДОВАНИЕ  
ПОЛЯРИЗУЕМОСТИ МОЛЕКУЛЫ  $H_2$   
В ВОЗБУЖДЕННОМ КОЛЕБАТЕЛЬНОМ СОСТОЯНИИ**

*В.С.Бутылкин, Г.В.Венкин, Л.Л.Кулюк, Д.И.Малеев*

*В.П.Протасов, Ю.Г.Хронопуло*

Обнаружено и измерено интерференционным методом изменение диэлектрической проницаемости водорода, вызванное возбуждением колебательного состояния при ВКР. Определена поляризуемость первого возбужденного колебательного состояния молекулы  $H_2$ .

Поляризуемость молекул в возбужденном состоянии  $\kappa^{(e)}$  определяет шарковский сдвиг этого состояния в световой волне, а также изменение диэлектрической проницаемости вещества, происходящее из-за

его возбуждения [1]; последнее явление может приводить к самовоздействию света [2 - 4]. В связи с этим экспериментальные данные о величинах  $\kappa^{(\epsilon)}$  представляют несомненный интерес, однако о таких измерениях в литературе не сообщалось.

В работе [1] предложено определять поляризуемость возбужденных состояний из интерференционных измерений нелинейной диэлектрической проницаемости вещества, возникающей под действием излучения. В настоящей работе демонстрируется возможность проведения таких измерений даже для колебательных состояний, разность поляризуемостей которых в общем случае меньше, чем в случае электронных состояний.

В качестве объекта измерений взята молекула  $\text{H}_2$ , поскольку для нее рассчитаны величины  $\kappa^{(\epsilon)}$  [5, 6] для первого возбужденного колебательного состояния.

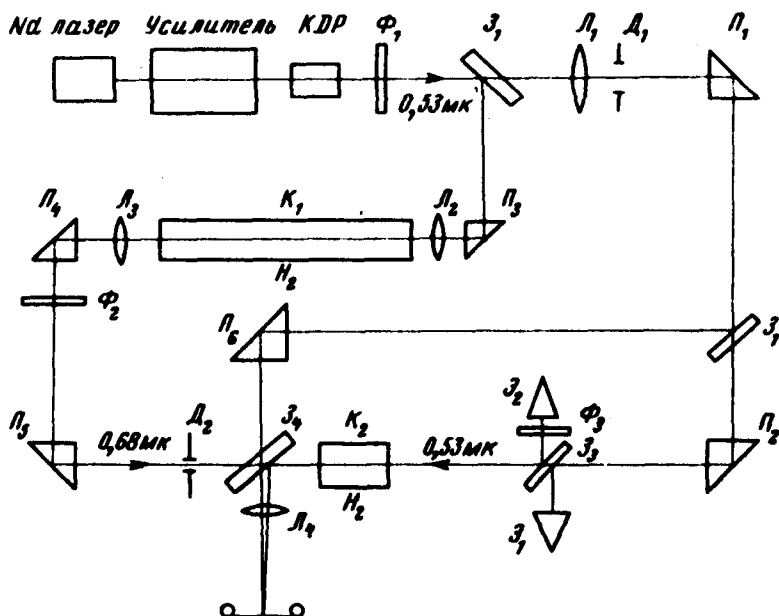


Рис. 1. Блок-схема экспериментальной установки:  $K_1, K_2$  — камеры со сжатым  $\text{H}_2$ ;  $Z_1 \div Z_4$  — зеркала;  $\Pi_1 \div \Pi_5$  — призмы;  $L_1 \div L_4$  — линзы;  $\mathcal{E}_1, \mathcal{E}_2$  — калориметры;  $\text{Пл}$  — фотографическая пленка;  $\Phi_1 \div \Phi_3$  — светофильтры

Схема экспериментальной установки показана на рис. 1. Накачкой служила вторая гармоника излучения одномодового неодимового лазера ( $\lambda_{\text{H}} = 0,53 \text{ мкм}$ ). Основная часть накачки линзой  $L_1$  (фокусное расстояние  $f = 300 \text{ см}$ ) направлялась в интерферометр типа Маха — Цендера ( $\Pi_2, \Pi_6, Z_1$  и  $Z_4$ ). В одном плече интерферометра находилась камера  $K_2$  (длинной  $L_2 = 4 \text{ см}$ ), наполненная водородом при давлении  $P_2 = 60 \text{ атм}$ .

Возбуждение колебаний молекул  $\text{H}_2$  в камере  $K_2$  производилось в процессе усиления стоксовой компоненты ВКР ( $\lambda_{\text{C}} = 0,68 \text{ мкм}$ ), полученной в камере  $K_1$  ( $L_1 = 75 \text{ см}$ ,  $P_1 = 60 \text{ атм}$ ). Фильтр  $\Phi_2$  пропускал только стоксову компоненту ВКР, которая затем направлялась в камеру  $K_2$  навстречу лучу накачки.

Возбуждение колебаний встречными пучками накачки и стоксового излучения позволяет избежать возникновения антистоксовой компоненты ВКР (в том числе осевой [7]), разрушающей возбужденное состояние.

Интерферометр был отъюстирован таким образом, чтобы полосы конечной ширины оказались локализованными внутри камеры  $K_2$  и отображались линзой  $L_4$  на фотопленку. Одновременно с интерферограммой регистрировались энергии накачки, поступающей в камеру  $K_2$  (калориметром  $\mathcal{E}_1$ ), и стоксовой компоненты, выходящей из этой камеры (калориметром  $\mathcal{E}_2$ ).

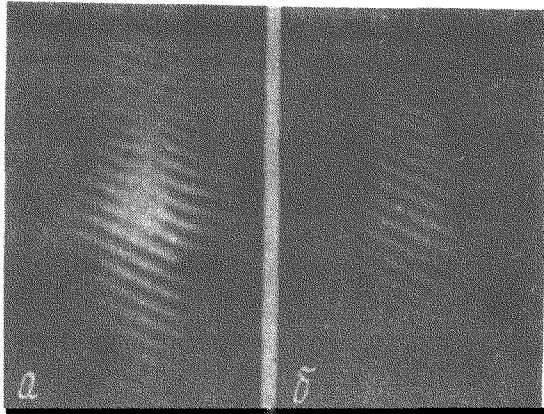


Рис. 2. Фотографии интерференционных полос в интерферометре Маха – Цендера: *a* – при наличии в камерах  $K_2$  стоксова излучения, *б* – стоксово излучение отсутствует

Типичные интерферограммы показаны на рис. 2, *a*. Направление изгиба полос соответствует положительной величине добавки к показателю преломления газа, обусловленной ВКР. В отсутствии стоксового излучения в камере  $K_2$  изгиба полос не наблюдалось (рис. 2, *б*).

По изгибу интерференционных полос можно найти величину разности поляризуемостей молекулы  $H_2$  в возбужденном и основном колебательных состояниях. Для этого вычислим приращение оптического пути в камере  $K_2$ , обусловленное возбуждением  $H_2$ . На частоте накачки к концу импульса длительностью  $t_{\text{имп}}$  это приращение равно<sup>1)</sup>

$$\Delta l \approx \frac{2\pi N}{n(\omega_H)} \int_0^{L_2} \chi_{\text{нл}} dz = \frac{\pi N(\kappa^{(e)} - \kappa^{(g)})}{n(\omega_H)} \int_0^{L_2} (\eta_0 - \eta) dz, \quad (1)$$

где  $n(\omega_H)$  – линейная часть показателя преломления для накачки;  $N$  – плотность числа молекул;  $\chi_{\text{нл}}$  – действительная часть нелиней-

<sup>1)</sup> Поскольку время жизни возбужденного состояния  $\tau \approx 5 \cdot 10^{-6}$  сек [8] много больше длительности импульса  $t_{\text{имп}} \approx 2 \cdot 10^{-8}$  сек, регистрируется интерференционная картина, установившаяся в конце импульса накачки.

ной восприимчивости одной молекулы (см. [1]);  $\eta_0$  и  $\eta$  разности населенностей основного и возбужденного колебательных состояний в начале и конце импульса накачки.

В эксперименте выполнялись следующие условия: 1) амплитуды полей накачки  $\mathcal{E}_H$  и стока  $\mathcal{E}_C (E_{H,C} = \mathcal{E}_{H,C} \exp[i\omega_{H,C}t] + \text{к.с.})$  были такими, чтобы населенности перехода за время импульса не насыщались; 2) пространственная длина импульсов много больше  $L_2$ ; 3) пространственное распределение интенсивностей пучков было близко к гауссовскому  $(|\mathcal{E}_{H,C}|^2 \sim \exp[-\frac{x^2}{a_{H,C}^2} - \frac{y^2}{b_{H,C}^2}])$  и их размеры при прохождении камеры  $K_2$  практически не менялись.

Поэтому для расчета  $\Delta l$  можно использовать соотношения:

$$\eta_0 - \eta = 4\hbar^{-4} T \eta_0 |r|^2 \int_0^{l_{\text{ИМП}}} |\mathcal{E}_H|^2 |\mathcal{E}_C|^2 dt, \quad (2)$$

$$\frac{d|\mathcal{E}_C|^2}{dz} = - \frac{8\pi^2 N |r|^2 T \eta_0}{\hbar^3 n_0(\omega_C) \lambda_C} |\mathcal{E}_H|^2 |\mathcal{E}_C|^2, \quad (3)$$

где  $T^{-1}$  — полуширина линии перехода,  $r$  — составной матричный элемент для комбинационного процесса.

Подставляя (2) и (3) в (1) и выразив  $|\mathcal{E}_C|^2$  в центре пучка на выходе из камеры через полную энергию стоксового импульса  $W_C$  и параметры  $a_C$  и  $b_C$ , найдем разность поляризуемостей.

$$\kappa^{(e)} - \kappa^{(g)} = \frac{\Delta l}{\lambda_H} \frac{\lambda_H}{\lambda_C} \frac{n(\omega_H)}{n(\omega_C)} \frac{\hbar \pi c a_C b_C}{W_C - W_{CВХ}}. \quad (4)$$

Здесь  $W_{CВХ}$  — энергия стоксовой компоненты, поступающая в камеру  $K_2$ .

Для энергии накачки  $W_H = 0,15 \text{ дж}$  и  $W_{CВХ} = 5 \cdot 10^{-3} \text{ дж}$ , при  $a_C \cdot b_C \approx 1,5 \cdot 10^{-3} \text{ м}^2$  была получена энергия  $W_C = 15 \cdot 10^{-3} \text{ дж}$  и наблюдалось относительное отклонение  $\Delta l / \lambda_H \approx 0,75$  в центре пучка.

С учетом погрешности в определении энергии, площади пучка и величины  $\Delta l / \lambda_H$  получаем, что разность поляризуемостей основного ( $v = 0$ ) и возбужденного ( $v = 1$ ) колебательных состояний на частоте накачки равна  $(1,2 \div 1,8) \times 10^{-41} \text{ а} \cdot \text{сек} \cdot \text{м}^2/\text{в}$ . Расчетные значения равны  $1,55 \cdot 10^{-41} \text{ а} \cdot \text{сек} \cdot \text{м}^2/\text{в}$  [6] и  $1,8 \cdot 10^{-41} \text{ а} \cdot \text{сек} \cdot \text{м}^2/\text{в}$  [5].

Мы благодарны Р.В.Хохлову за внимание к работе и полезные обсуждения.

Московский  
государственный университет  
им. М.В.Ломоносова

Поступила в редакцию  
7 марта 1974 г.

### Литература

- [1] В.С.Бутылкин, А.Е.Каплан, Ю.Г.Хронопуло. ЖЭТФ, 59, 921, 1970.  
[2] Г.А.Аскаръян. Письма в ЖЭТФ, 4, 400, 1966.

- [3] В.С.Бутылкин, А.Е.Каплан, Ю.Г.Хронопуло. Изв. высш. уч. зав., сер. Радиофизика, **12**, 1792, 1969; Оптика и спектроскопия, **31**, 224, 1971.
- [4] Н.В.Карлов, Н.А.Карпов, Ю.Н.Петров, О.М.Стельмах. Письма в ЖЭТФ, **17**, 337, 1973.
- [5] Von E. Neumann, V. Wilhelmi. Ann. Phys. **27**, 248, 1971.
- [6] Б.Вилгельми, Э.Гойман. ЖПС, **19**, 550, 1973.
- [7] В.С.Бутылкин, Г.В.Венкин, В.П.Протасов, Н.Д.Смирнов, Ю.Г.Хронопуло, М.Ф.Шаляев. Письма в ЖЭТФ, **17**, 400, 1973.
- [8] J. Ducuing, C. Joffrin, J. Coffinet. Opt. Commun, **2**, 245, 1970.
-