

基于激发态吸收的 C_{60} 分子 全光开关特性研究

国风云 李淳飞 王瑞波 杨 昆

哈尔滨工业大学应用物理系, 哈尔滨 150006

1993年6月4日收到

用 532.0nm 的脉冲 Nd:YAG 激光作为泵浦光, 747.0nm 的连续半导体激光作为探测光, 在 C_{60} 甲苯溶液中, 利用 C_{60} 分子的三重态-三重态非线性吸收效应, 获得 C_{60} 分子的全光开关和全光调制特性, 并用速率方程进行了动力学数值模拟, 得到与实验相一致的结果。

PACC: 4270G; 4280E; 4280K

一、引 言

近来, 由于 C_{60} 的特殊分子结构, 它的物理、化学性质引起人们高度重视^[1], 有关 C_{60} 分子的非线性光学性质的研究已有多项报道^[2,3], 显示出它在非线性光学领域潜在的重要应用。

本文用脉冲激光泵浦 C_{60} 甲苯溶液导致 C_{60} 分子三重激发态对连续探测激光的非线性吸收, 演示了 C_{60} 分子全光开关和全光调制特性。此光控光开关机制有别于基于饱和和吸收的光开关器件原理^[4]。我们采用速率方程进行了动力学数值模拟, 理论分析与实验结果基本符合。

二、理 论

从 C_{60} 分子电子能级结构和光物理特性可知^[5-7], 若用 532.0 nm 波长的纳秒级脉冲激光泵浦介质, 大量分子从基态 S_0 被激发至第一单重激发态 S_1 , 由于单重态 (S_1) \rightarrow 三重态 (T_1) 的系际交叉速率常数较大 ($K_{ST} \sim 10^9 s^{-1}$), 且三重态 (T_1) 量子产率极高 ($\Phi_T \approx 1$), 则绝大部分分子通过系际跃迁转移至具有较长寿命的第一三重激发态 T_1 。在泵浦光作用介质的同时, 若以一束波长为 747.0nm 连续激光作为探测光, 由于该波长位于 C_{60} 分子三重激发态吸收光谱的强吸收峰处^[7], 在探测光作用下会有大量分子自 T_1 态跃迁至更高的三重激发态 T_n , 因高激发态寿命极短 (估计 $\langle 1ps \rangle$)^[8] 分子快速无辐射弛豫回到 T_1 态, 再通过无辐射系际跃迁返回基态 S_0 。

基于上述分析, 有泵浦光作用介质时, C_{60} 分子三重激发态对探测光有较强吸收, 致使探测光表现出从高透射状态到低透射状态的瞬时跃变——光控光开关行为, 而且透过

介质的探测光光强将受到泵浦光光强的调制。

可用速率方程描述 C_{60} 介质各能级粒子数密度随时间的变化。由于高激发态寿命极短，只需考虑 S_0 , S_1 和 T_1 能级的情况，设相应各能级的粒子数密度为 $N_0(t)$, $N_S(t)$, $N_T(t)$ ：

$$\begin{aligned} \frac{dN_0}{dt} &= -\frac{\sigma_L I_L(t)}{h\nu_L} N_0 + \frac{1}{\tau_{S0}} N_S + \frac{1}{\tau_{T0}} N_T, \\ \frac{dN_S}{dt} &= \frac{\sigma_L I_L(t)}{h\nu_L} N_0 - \frac{1}{\tau_{S0}} N_S - \frac{1}{\tau_{ST}} N_S, \\ \frac{dN_T}{dt} &= \frac{1}{\tau_{ST}} N_S - \frac{1}{\tau_{T0}} N_T, \\ N &= N_0 + N_S + N_T, \end{aligned} \quad (1)$$

其中 $I_L(t) = I_0 f(t)$ 为泵浦光功率密度， I_0 为泵浦光峰值功率密度， $f(t)$ 为描述泵浦光脉冲形状的时间函数， ν_L 为泵浦光频率， N 为总分子布居数。

C_{60} 分子基态和激发态吸收光谱表明^[7]，基态对探测光的吸收远小于三重激发态对探

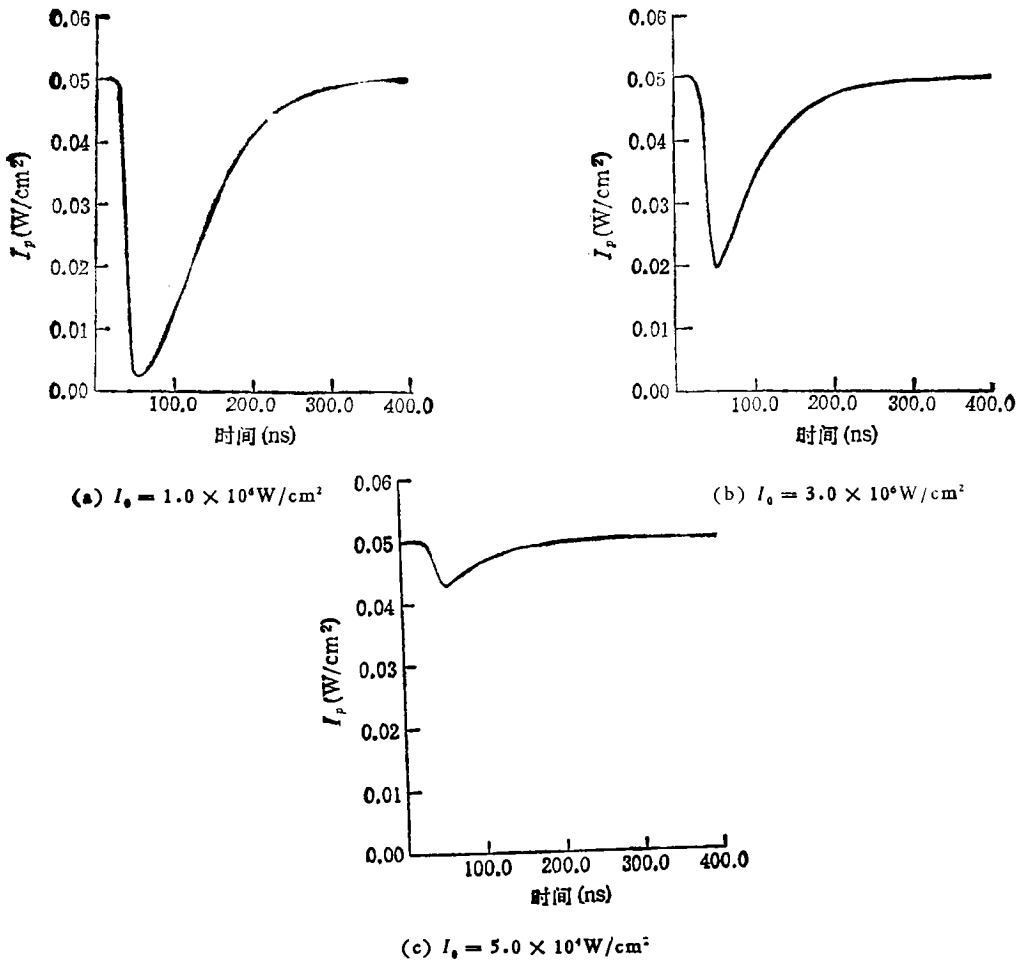


图1 光控光开关及光调制特性的理论模拟曲线

吸收决定,可表示为

$$I_p = I_{p0} \exp[-\sigma_T N_T(t)L], \quad (2)$$

式中 I_p 和 I_{p0} 分别为有无泵浦光时透过介质的探测光功率密度, σ_T 为 T_1 态对探测光的吸收截面, L 为介质厚度。

据我们的实验条件,采用如下数据^[5,7]:

基态 (S_0) 对 532.0nm 光的吸收截面 $\sigma_L = 2.87 \times 10^{-18} \text{cm}^2$;三重态 (T_1) 对 747.0 nm 光的吸收截面 $\sigma_T = 5.74 \times 10^{-17} \text{cm}^2$; 单重态 (S_1) 至基态 (S_0) 的弛豫时间 $\tau_{S_0} = 25 \text{ns}$; 三重态 (T_1) 至基态 (S_0) 的弛豫时间 $\tau_{T_0} = 250 \text{ns}$;单重态 (S_1) \rightarrow 三重态 (T_1) 系际跃迁时间 $\tau_{S_1 T_1} = 1.2 \text{ns}$, 并设泵浦光脉冲形状为高斯函数 $f(t) = \exp[-C(t/\Delta t)^2]$, 脉冲宽度 $\Delta t = 15 \text{ns}$, C 为归一化常数, I_0 取值为 $1.0 \times 10^6 \text{W/cm}^2 - 5.0 \times 10^4 \text{W/cm}^2$, I_{p0} 取值为 $5.0 \times 10^{-2} \text{W/cm}^2$, L 取值为 0.5cm。

联立方程(1)和(2),进行计算机数值求解,得到探测光的透射光功率密度随时间变化及其受泵浦光光强调制情况(如图 1)。

计算结果给出,在泵浦光作用下,透过介质的探测光呈现瞬态光控光开关行为。光开关的开启时间为 15ns, 关闭时间为 300ns。由图 1 还可见,对应不同的泵浦光峰值功率密度,透过介质的探测光光强不同,显示出光调制特性。

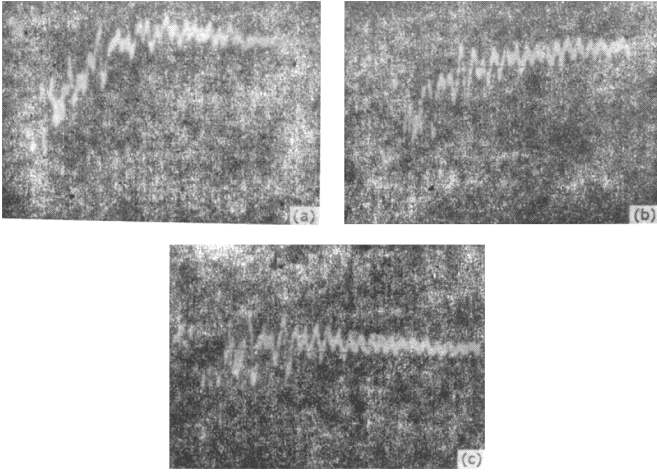


图 2 实验获得的光控光开关和光调制特性示波器扫描时基: 100ns/div;
(a),(b),(c) 说明同图 1

三、实 验

实验中使用调Q倍频 Nd:YAG 激光器输出的 532.0nm 激光作为泵浦光,脉冲宽度为 15ns,以连续半导体激光器输出的 747.0nm 光作为探测光。两束光由会聚透镜共线入射到盛有 C₆₀ 甲苯溶液的样品池中,样品未经去气处理,样品池厚为 0.5cm,样品对 532.0nm 波长光的线性透射率为 2%,对 747.0nm 波长光的线性透射率为 96%。泵浦光最大峰值功率密度可达 $I_0 = 1.0 \times 10^6 \text{W/cm}^2$,探测光功率密度 $I_{p0} = 5.0 \times 10^{-2} \text{W/cm}^2$ 。透过样品的光经单色仪色散后,由光电倍增管接收 747.0nm 探测光。分束器分出小部分泵浦光亦由光电倍增管接收,作为外触发源与探测光的电信号同时送入 500MHz 存储示波器。实验观测到的典型的光控光开关和光调制结果如图 2 所示。

图 2 清楚显示:光开关开启时间为 15ns,关闭时间为 300ns;改变泵浦光峰值功率密度 ($I_0 = 1.0 \times 10^6 \text{W/cm}^2 - 5.0 \times 10^4 \text{W/cm}^2$),透过样品的探测光光强受到相应的调制。可见,实验结果与前面的理论分析基本相符。

四、结论与讨论

以纳秒级脉冲激光作为泵浦光,以连续激光作为探测光,在 C₆₀ 甲苯溶液中观测到全光开关和全光调制现象:无泵浦光作用介质时,探测光几乎全部透过介质,而当有泵浦光作用时,介质对探测光有较大吸收,产生瞬态全光开关行为;若改变入射泵浦光的功率密度,则三重态 (T_1) 分子布居数不同,对探测光的吸收也就不同,导致全光调制特性。

根据具体实验条件 $I_0 \gg I_{p0}$ ($I_0/I_{p0} \sim 10^6$),速率方程中没有考虑探测光对 C₆₀ 介质各能级粒子数密度的影响。理论分析中也没有考虑泵浦光光强在介质中沿光传播方向的变化。这些因素对光开关和光调制特性的影响有待更深入细致的研究。

就实验原理而言,若选择泵浦光波长位于 C₆₀ 分子基态吸收光谱的峰值处(213.0nm, 257.0nm 或 329.0nm)^[9],将大大降低实现此光控光开关所需的泵浦光能量,同时有利于提高光开关的对比度。

- [1] H. W. Kroto, A. W. Allaf and S. P. Balm, *Chem. Phys. Rev.*, **91**(1991), 1213.
- [2] Zhanxiang Zhang, Dadi Wang and Peixian Ye, *Opt. Lett.*, **17**(1992), 973.
- [3] 李淳飞、王玉晓、国风云、王瑞波、张雷, *物理学报*, **42**(1993), 1236.
- [4] H. M. Gibbs *Optical Bistability, Controlling Light with Light* (ACADEMIC PRESS, INC. Orlando, 1985), chap. 5, p. 195.
- [5] R. R. Hug and J. J. Grabowski, *J. Phys. Chem.*, **95**(1991), 6073.
- [6] J. W. Arbogast, A. P. Darmany, C. S. Foote, Y. Rubin, F. N. Diederich, M. M. Alvarez, S. J. Anz and R. L. Whetten, *J. Phys. Chem.*, **95**(1991), 11.
- [7] T. W. Ebbesen, K. Tanigaki and S. Kuroshima, *Chem. Phys. Lett.*, **181**(1991), 501.
- [8] M. Hereher, W. Chu and D. L. Stockman, *IEEE J. Quantum Electronics*, **QE-4**(1962), 954.
- [9] J. P. Hare, H. W. Kroto, R. Taylor, *Chem. Phys. Lett.*, **177**(1991), 394.

STUDIES ON THE CHARACTERISTICS OF ALL-OPTICAL SWITCHING BASED ON THE EXCITED STATE ABSORPTION OF C₆₀ MOLECULES

GUO FENG-YUN LI CHUN-FEI WANG RUI-BO YANG KUN

Department of Applied Physics, Harbin Institute of Technology, Harbin 150006

(Received 4 June 1993)

ABSTRACT

We have obtained the characteristics of all-optical switching and modulation of C₆₀ in toluene pumped by a pulsed Nd:YAG laser at $\lambda = 532.0\text{nm}$ and probed by a CW semiconductor laser at $\lambda = 747.0\text{nm}$, based on nonlinear triplet-triplet absorption in C₆₀. Dynamic processes of switching and modulation are simulated using rate equations, which coincide with the experimental results.

PACC: 4270G; 4280E; 4280K