

用激光频域技术研究 CS_2 分子的 超快速弛豫过程*

费浩生 陈肖慧¹⁾ 韩 力 赵家龙²⁾

吉林大学物理系, 长春, 130023

1990 年 11 月 7 日收到

用激光频域方法研究 CS_2 分子的快速光克尔效应动力学过程. 发现它存在两种弛豫过程, 分别在 ps 和 0.1ps 数量级. 讨论了上述过程的物理机制.

PACC: 4265; 4280F; 4265J; 4265F

一、引 言

CS_2 是熟知的光克尔介质, 由于它有大的非线性折射率而受到人们的重视. 长期以来人们一直致力于该种介质的三阶非线性极化率的弛豫时间的研究. 1975 年 Ippen 等人^[1]用超短光脉冲直接测得 CS_2 的光感应双折射弛豫时间为 2.1ps. 近年来, 随着飞秒 (10^{-15}s) 激光脉冲技术的进展, 可以对这类光克尔效应的弛豫时间以更高时间分辨率进行测量, 相继有多位学者用时间分辨干涉技术^[2]、光克尔快门^[3]、受激散射^[4]等测量了 CS_2 克尔介质的三阶非线性极化率弛豫时间, 他们指出这种介质的非线性光学弛豫时间有两种成份, 即在 1.4—2.2ps 之间的慢过程和 0.2—0.3ps 之间的快过程. 普遍认为 CS_2 中微微秒弛豫时间的慢过程来源于取向分子的旋转扩散的无规过程, 而对亚微微秒的快速弛豫过程来源目前尚不清楚, 人们对其物理机制提出多种解释: 阻尼振动运动; 由于碰撞时间有关的行为; 与具有大的各向异性极化分子的转动扩散有关的短时行为^[2,5,6].

在这里选择可调谐激光感应光栅技术(频域方法)来研究 CS_2 光克尔效应的响应时间, 它不像超短脉冲的时域技术那样, 时间分辨受脉冲宽度限制. 而又不像激光散射方法, 它可以测出极化率各分量的时间响应特性. 利用此方法已成功地测出喇曼模的横向弛豫时间^[7]和吡啶分子激发态的弛豫时间^[8]. 本文将讨论这种频域技术用于光克尔型介质的非线性弛豫时间的测量, 讨论这类分子在光场作用下取向运动的响应函数以及数值拟合方法.

* 国家自然科学基金资助的课题.

1) 现工作单位: 沈阳建筑工程学院.

2) 现工作单位: 中国科学院长春物理研究所.

二、理 论

当光场作用于介质时将引起介质折射率的变化

$$n_i = n_0 + n_2 I, \quad (1)$$

式中 n_i 为某一偏振方向的折射率, n_0 为未受光场作用时的介质折射率, I 为入射光强, n_2 是与三阶非线性极化系数有关的量^[9]

$$n_2 = \chi^{(3)} / n_0 \epsilon_0 \quad (\text{MKS}). \quad (2)$$

在文献[10]中已指出当两束不同频率 ω_1 和 ω_2 的激光束在这种克尔介质中相干时, 将感应一运动的折射率光栅, 当光栅运动速度与介质的响应速度相匹配时, 将得到最大的衍射效率, 介质对运动光栅的频率响应函数为

$$F(\Delta\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} h(t') \exp(-i\Delta\omega t') dt', \quad (3)$$

式中 $h(t')$ 为介质的时间响应函数; $\Delta\omega = \omega_1 - \omega_2$ 为相干光束的频率差。运动光栅的衍射效率

$$\eta \propto |F(\Delta\omega)|^2. \quad (4)$$

与文献[8]中的一样, 为要在频域讨论 CS_2 分子的弛豫过程, 首先必需得到 CS_2 分子在相干光场作用下的响应函数。

CS_2 分子在光场作用下, 分子将趋向光场方向排列, 宏观上形成一由于分子有序排列的各向异性, 之后分子通过转动扩散使其分子取向随机化, 这时引起的折射率变化响应为

$$n_2 = A \exp(-t/\tau_1), \quad (5)$$

式中 τ_1 为取向恢复时间。同时在光场作用下的取向分子由于偏离平衡位置在周围分子形成的势阱中作快速的局域阻尼运动^[6], 如果把分子看成具有一转动惯量 I 的取向谐振子, 则其折射率随时间变化运动方程可用二阶微分方程描述

$$\frac{I}{\mu} \frac{d^2 n_2}{dt^2} + \frac{\xi}{\mu} \frac{dn_2}{dt} + n_2 = n' \langle I(t) \rangle, \quad (6)$$

式中 ξ 为阻尼系数, μ 为均匀势中强度因数, $\langle I(t) \rangle$ 为平均光强, n' 为常数因数, 相应的折射率响应函数为

$$n'_2(t) = B \exp(-t/\tau_2) \sin(t/\beta), \quad (7)$$

则总的折射率变化的响应函数为

$$n_2(t) = A \exp(t/\tau_1) + B \exp(-t/\tau_2) \sin(t/\beta), \quad (8)$$

A 和 B 为权重因数。对(8)式作富氏变换, 得到频率响应函数

$$F(\Delta\omega) = \frac{A\tau_1}{1 + i\Delta\omega\tau_1} + \frac{B}{2i} \left[\frac{\tau_2}{1 + i(\Delta\omega - 1/\beta)\tau_2} - \frac{\tau_2}{1 + i(\Delta\omega + 1/\beta)\tau_2} \right]. \quad (9)$$

考虑到由非共振背景和其他因素对实验的影响, 引入另两个参数 C_1 和 C_2 , 则运动光栅的衍射强度的频率响应为

$$I(\Delta\omega) \propto [P(\Delta\omega) + C_1]^2 + [Q(\Delta\omega) + C_2]^2, \quad (10)$$

式中 $P(\Delta\omega)$ 和 $Q(\Delta\omega)$ 为(9)式的实部和虚部, 将上式对实验曲线进行数值拟合, 即可得

到 τ_1 和 τ_2 。

三、实验结果与数值拟合

在文献[10]中介绍了激光频域技术的基本原理和实验方法。本文中使用的实验装置如文献[10]中的图3所示,它类似于四波混频装置,实验所用的激光系统为一自制的电光Q开关YAG激光器经KTP倍频后由分束器分成两束激光,分别抽运两台染料激光器,染料激光器I的激光又被分束器分成传播方向相反的两束激光,频率为 $\omega_1 = \omega_3$,染料激光器II的频率为 ω_2 。 ω_1 和 ω_2 为两等强度的抽运光,在本实验中光束能量约3mJ,两束光夹角约为 2° 。 ω_3 为探测光,衍射强度由另一分束器取出,信号由光电倍增管接收,Boxcar积分器处理。染料激光器的脉宽为10ns,重复率为1次/s,染料激光器的波长调谐由一线性调谐机构完成,它可在4000—7000Å间线性调谐,线宽为0.1Å,实验用激光的中心波长为5670Å,实验时首先使三束光调谐至中心波长,然后调谐 ω_2 ,调整实验装置中的偏振器偏振方向,可以得到相应于不同组态的 χ_{ijkl} 之衍射信号,图1中(a)和(b)分别为对 χ_{xxxx} 和 χ_{xyyx} 得到的响应曲线,图中实心圆点为实验点,实线为由实验结果进行非线性参量拟合的结果^[11]。拟合所得有关参数如下:

χ_{xxxx} :

$$\tau_1 = 2.40 \pm 0.04(\text{ps}), \quad \tau_2 = 0.22 \pm 0.02(\text{ps}),$$

$$A = 0.19 \pm 0.10, \quad B = 4.26 \pm 0.34,$$

$$C_1 = 0.082, \quad C_2 = 0.081,$$

$$\beta = 0.11 \pm 0.01(\text{ps}).$$

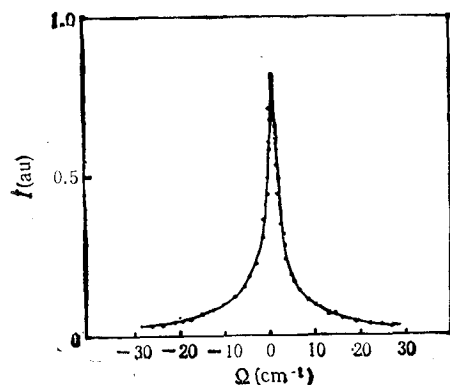
χ_{xyyx} :

$$\tau_1 = 1.42 \pm 0.02(\text{ps}), \quad \tau_2 = 0.24 \pm 0.01(\text{ps})$$

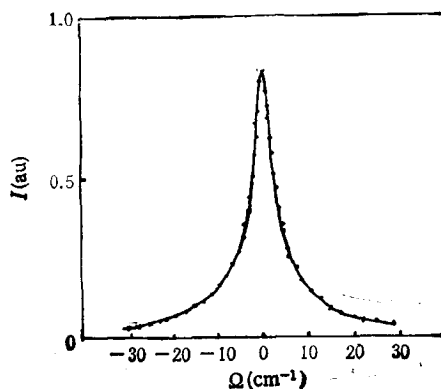
$$A = 0.23 \pm 0.09, \quad B = 3.3 \pm 0.02,$$

$$C_1 = 0.070, \quad C_2 = 0.068.$$

$$\beta = 0.18 \pm 0.01(\text{ps}).$$



(a) χ_{xxxx}



(b) χ_{xyyx}

图1 不同组态的实验结果与数值拟合曲线

对 CS_2 分子取向弛豫时间有两个过程, 相应于分子取向的慢过程, 弛豫时间为 ps 数量级, 而与局域阻尼运动有关的快过程, 弛豫时间为 0.1ps 数量级。值得指出的是对不同组态 χ_{ijk} , 其弛豫时间不同, 这是可以理解的。 CS_2 是一个线性分子, 不同组态相当于不同偏振光场作用该分子, 其运动状态将不同, 显然其弛豫时间应不同。由权重因数 A, B 的值可以知道, 快速弛豫过程对折射率的改变起主要作用。上述结果与时域方法所得结果基本一致^[4,12]。

- [1] E. P. Ippen, C. V. Shank, *Appl. Phys. Lett.*, **26**(1975), 92.
- [2] M. Halbout, C. L. Tang, *Appl. Phys. Lett.*, **40**(1982), 765.
- [3] J. Etchepare, G. Grillon, A. Antonetti, *Chem. Phys. Lett.*, **107**(1984), 489.
- [4] S. Ruhman, L. R. Williams, A. G. Joly, B. Kohler, K. A. Nelson, *J. Phys. Chem.*, **91**(1987), 2237.
- [5] M. Golombok, G. A. Kenney-Wallace, *Chem. Phys.*, **38**(1987), 383.
- [6] B. I. Green, R. C. Farrow, *J. Chem. Phys.*, **77**(1982), 4779.
- [7] 费浩生、张云、韩力、赵峰、魏振乾, *物理学报*, **38**(1989), 2054.
- [8] 费浩生、陈肖慧、韩力、赵家龙, *物理学报*, **40**(1991), 43.
- [9] H. M. Gibbs, *Optical Bistability: Controlling Light With Light*, Academic Press Inc. (1985), p. 365.
- [10] 费浩生, *物理*, **19**(1990), 100.
- [11] Y. Bard, *Nonlinear Parameter Estimation*, New York Academic, (1974).
- [12] C. Kalpouzos, W. T. Lotshaw, D. Memorrow, G. A. Kenney-Wallace, *J. Phys. Chem.*, **91**(1987), 2028.

A STUDY OF ULTRAFAST RELAXATION PROCESSES IN CS_2 BY LASER FREQUENCY DOMAIN METHOD

FEI HAO-SHENG CHEN XIAO-HUI HAN LI ZHAO JIA-LONG

Department of Physics, Jilin University, Changchun, 130023

(Received 7 November 1990)

ABSTRACT

The dynamic processes of ultrashort Kerr effect in CS_2 have been studied by laser frequency domain method. It is found that there are two kinds of relaxation processes which are 1ps and 0.1ps respectively. The physical mechanism is discussed in this paper.

PACC: 4265; 4280F; 4265J; 4265F