

用单光束方法研究 C₆₀/C₇₀ 溶液的 非线性光学性质

罗 挺 赵继然 吴正亮 江敏华 林福成

(中国科学院上海光机所, 上海 201800)

提要 本文报道了利用单光束方法研究 C₆₀/C₇₀ 甲苯溶液的非线性光学性质, C₆₀/C₇₀ 的浓度为 3.5×10^{-3} mol, C₆₀ : C₇₀ = 3 : 1, 实验所用的泵浦光源为被动锁模 Nd : YAG 激光器, 脉宽 40 ps, 实验给出 C₆₀/C₇₀ 溶液的非线性折射率 $n_2 = (2.3 \pm 0.3) \times 10^{-11}$ (esu), 并给出三阶超极化率 $\gamma = 1.1 \times 10^{-31}$ (esu)。

关键词 富勒分子, Z-扫描, 非线性介质

Study of nonlinear optical properties of C₆₀/C₇₀ solution with a single light beam

LUO Ting, ZHAO Jiran, WU Zhengliang, JIANG Minhua, LIN Fucheng

(Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Academia Sinica, Shanghai 201800)

Abstract A single light beam method for measuring the nonlinear optical index of C₆₀/C₇₀ in toluene solution at picosecond range is reported. The concentration of C₆₀/C₇₀ is 3.5×10^{-3} mol, and the content of C₆₀ to that of C₇₀ is 3 : 1. The pump beam with 40ps width was generated by an passive mode-locking Nd : YAG laser. The nonlinear refractive index of C₆₀/C₇₀ solution is $n_2 = (2.3 \pm 0.3) \times 10^{-11}$ (esu), the average hyper-susceptibility $\gamma = 1.1 \times 10^{-31}$ (esu).

Key words Fullerene molecule, Z- scan, nonlinear optical medium

1 引言

富勒分子^[1]是近几年才发现的碳原子的第三种同素异构体, 具有三维笼状结构。国际上对富勒分子性能的大量研究去年才开始进行, 主要对富勒分子的各种特性进行研究, 在超导方面的研究进展迅速^[2~4]。目前, 对于富勒分子的非线性光学性质的研究已有多项报道^[5~9], 文献中都是采用简并四波混频法来研究 C₆₀ 的非线性光学性质, 而且测量结果差别很大。本文报道利用单光束方法在 ps 范围研究 C₆₀/C₇₀ 甲苯溶液的三阶非线性光学性质, 测量了混合溶液的非

线性折射率 n_2 , 由此算出三阶极化率系数 $\chi^{(3)}$ 和分子的三阶超极化率 γ , 测量值 $\chi^{(3)}$ 与美国海军研究室 Kafafi^[5] 的最新测量结果基本一致。

单光束方法与传统的简并四波混频方法比较, 具有实验装置简单, 光路调节容易, 测量灵敏度高以及对材料有较大的适用范围等优点, 合理的配制光路, 可同时进行多个物理量的测量, 不足之处是对实验样品和条件(激发光强)以及材料的非线性吸收有一定限制。

2 实验结果和讨论

C₆₀/C₇₀ 是采用直流接触碳弧气化产生, 蒸溜提纯得到 C₆₀/C₇₀, 比例 3:1, 纯度大于 99%, 然后将 C₆₀/C₇₀ 溶于甲苯溶液中, 得到浓度为 3.5×10^{-3} mol 的溶液。图 1 所示为 Z- 扫描测量系统, 泵浦光源为被动锁模 Nd : YAG 激光器, 通过采用腔内和腔外加小孔的方法, 仔细调节光路, 可得到单模输出的高斯光束。激光脉宽为 40 ps, 波长为 1.064 μm, 为避免连续脉冲间的热积累, 脉冲重复频率为 1 Hz, 用一分光镜将泵浦光分成两束, 一束光经探测器 D₁ 接收用来标定入射光的功率, 另一束光经 $f = 30$ mm 的透镜聚焦后进入样品盒, 盒内装有 C₆₀/C₇₀ 甲苯溶液, 溶液的浓度为 3.5×10^{-3} mol, C₆₀ : C₇₀ = 3 : 1, 在样品后放入小孔, 用探测器 D₂ 接收进入小孔的光信号。样品 S 由 L 的焦点内向焦点及焦点外扫描过程中, 记录下样品在不同位置 Z 处的透过率, 从而获得 T-Z 曲线中峰 - 谷变化, 其计算公式为^[10,11]

$$\Delta T_{p-v} = 0.406(1-S)^{0.25}\Delta\Phi_0 \quad (1)$$

其中

$$S = 1 - \exp(-2r_a^2/\omega_a^2) \quad (2)$$

$$n_2 = \Delta\Phi_0\alpha_0\lambda / \{2\pi I_0[1 - \exp(-\alpha_0 L)]\} \quad (3)$$

上两式中, ΔT_{p-v} 为扫描曲线透过率的峰谷差值, r_a 为小孔半径, ω_a 为小孔处高斯光束的半径, L 为样品厚度, I_0 为光腰处的泵浦光束强度, α_0 为样品的线性吸收系数, λ 为泵浦光波长。

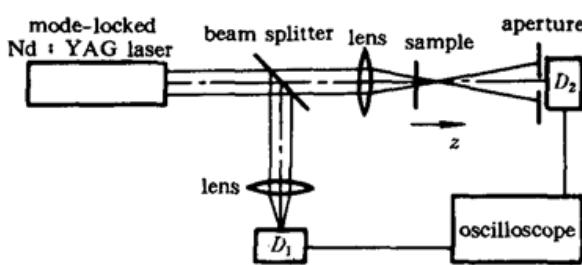


Fig. 1 The Z-scan experimental setup

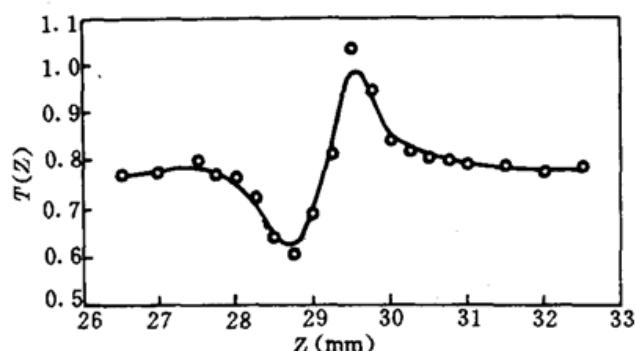


Fig. 2 The measurement result of the nonlinear optical refractive index of C₆₀/C₇₀ solution in toluene. The solid curve is the theoretical fitting curve, and "o" are the experimental data

图 2 给出 Z 扫描测量结果。图中的 o 为实验测得点, 实线是理论拟合的结果。实验中所使用的样品厚度为 1.0 mm, 经空间滤波后入射到样品上的脉冲能量为 2.8×10^{-2} mJ, 透镜(样品前)后光腰处光斑为 ~ 30 μm, 激光的峰值功率为 1.0 GW/cm², 由此得到样品的非线性折射率 $n_2 = (2.3 \pm 0.3) \times 10^{-11}$ (esu), 由此可算出三阶极化率系数 $\chi^{(3)} = 9.1 \times 10^{-13}$ (esu), 由 $\chi^{(3)}$ 与分子三阶超极化率 γ , 溶液中介质的分子密度的关系为

$$\chi^{(3)} = N_0 L_0 \gamma \quad (4)$$

其中 $L_0 = [(n^2 + 2)/3]^4$ 为局域场因子, $N_0 = N_a C$, N_a 是阿伏伽德罗常数。考虑到溶液中 C_{60}/C_{70} 的含量很低, n 可取纯甲苯溶液的折射率, 即 $n = 1.49$, 这样, 根据(4)式可算出 $\gamma = 1.1 \times 10^{-31}$ (esu)。

非线性折射率来源于^[10]: 1) 纯粹电子效应, 这种由于电子分布变化而引起折射率变化的响应时间为 $10^{-14} \sim 10^{-15}$ s; 2) 高频克尔效应, 其响应时间为 $10^{-11} \sim 10^{-12}$ s; 3) 电致伸缩效应, 其响应时间为 $10^{-8} \sim 10^{-9}$ s; 4) 热效应, 其响应时间大约为 $10^{-4} \sim 1$ s。在我们所使用的激光脉宽条件下, 只能测出前二者的效应。

总之, 我们用单光束法对 C_{60}/C_{70} 混合溶液的非线性折射率进行了研究。实验是在 ps 范围研究 C_{60}/C_{70} 甲苯溶液的非线性光学性质, 这样所测的结果排除了响应速度慢的各种机制, 可和 ns 激光的结果互相补充。

参加本项工作的还有谢燕燕同志。

参 考 文 献

- 1 Robert F. Curl et al., *Scientific American*, 32, (1991)
- 2 K. Holczer et al., *Phys. Rev. Lett.*, 67(2), 271(1991)
- 3 J. P. Hare et al., *Chem. Phys. Lett.*, 177(4-5), 394(1991)
- 4 Paul A. Heiney et al., *Phys. Rev. Lett.*, 66(22), 2911(1991)
- 5 Z. H. Kafafi et al., *Phys. Rev. Lett.*, 68, 2705(1992)
- 6 Zhanxiang Zhang et al., *Opt. Lett.*, 17, 973(1992)
- 7 W. J. Blau et al., *Phys. Rev. Lett.*, 67, 1423(1991)
- 8 Qihuang Gong et al., *J. Appl. Phys.*, 71, 3025(1992)
- 9 Z. H. Kafafi et al., *Chem. Phys. Lett.*, 188, 492(1992)
- 10 M. Sheik-Bahae et al., *Opt. Lett.*, 14, 955(1989)
- 11 M. Sheik-Bahae et al., *IEEE. J. Quant. Electr.*, QE-26, 760(1990)