

C₆₀ 对 ps 光脉冲的限幅效应

宋 瑛 林 杨 森 王 瑞 波 杨 昆 张 雷 李 淳 飞

(哈尔滨工业大学物理系, 哈尔滨 150006)

提要 研究了 C₆₀ 甲苯溶液对 ps 光脉冲的限幅效应, 证明了光限幅效应是单重态激发态吸收的结果; 同三重态激发态吸收光限幅效应相比, 单重态激发态吸收光限幅具有限幅能量低、响应速度快等优点。实验结果与理论拟合结果基本符合。

关键词 C₆₀, 单重态, 三重态, 光限幅, 激发态吸收

1 引 言

光限幅效应是指在低光强激发下, 介质具有较高的线性透射率, 随输入光强的增加, 输出光强近似线性增加, 在高光强激发下, 介质具有较低的非线性透射率, 当输入光功率达到一定阈值后, 随输入光强的增加, 输出光强被限制在一定范围。光限幅效应对于研制轻便型的激光护目镜具有重要意义。同其他材料相比, C₆₀ 分子的光限幅效应具有响应速度快, 限制频带宽 (从近紫外到中红外这一宽阔的波段范围), 可以对高入射激光能量密度起限制作用等优点, 引起研究人员的注意。研究结果表明 C₆₀ 光限幅效应的机理主要是反饱和吸收^[1] (Reverse Saturable Absorption), 即由于介质的激发态吸收截面大于基态的吸收截面, 在一定的光强范围内, 介质的吸收系数随输入光强增大而增加的现象。以往的工作多集中在研究对 ns 光脉冲限制方面, 并没有充分利用 C₆₀ 分子的快速响应特性, 而且光限幅能量较高^[2~4]。为降低 C₆₀ 分子反饱和吸收光限幅的限幅能量, 提高光限幅响应速度, 作者应用 ps 激光脉冲研究了 C₆₀ 的快速光限幅效应, 并同 C₆₀ 对 ns 脉冲的光限幅效应进行了比较。

2 C₆₀ 的激发态吸收

C₆₀ 球状分子的内外表面具有 60 个 π 电子, 组成一个三维 π 电子共轭体系, C₆₀ 的电子能级与有关振动能级如图 1 所示, 具有单重态和三重态结构。其中 S₀, S₁, S₂ 分别为单重态基态、第一激发态、高级激发态; S_v 为单重态振动能级; T₁, T₂, T_v 分别为三重态第一激发态、高级激发态和三重态振动能级; τ_{S0} , τ_{T0} , τ_{ST} 分别为单重态第一激发态至基态的弛豫时间、三重态第一激发态至基态

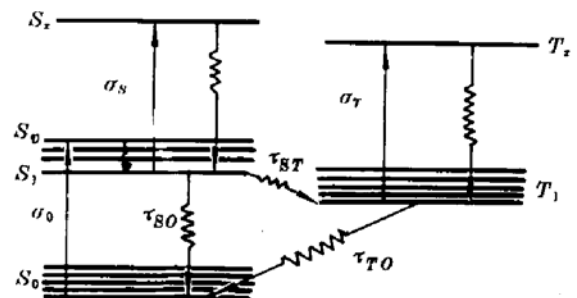


Fig. 1 The energy-level diagram of C₆₀ molecule

弛豫时间、三重态第一激发态至基态

的弛豫时间、单重态与三重态系间跃迁时间。在 400 ~ 1000 nm 波长范围内,单重态激发态的吸收截面 σ_{S_1} 和三重态的吸收截面 σ_{T_1} 均大于基态的吸收截面 σ_{S_0} ^[5]。此外, C₆₀ 分子具有较多的振动能级,基态与激发态可以同时吸收同频率的光子。在激光照射下,基态粒子吸收光子跃迁到第一激发态的振动能级 S_0 上并迅速弛豫至第一激发态的最低能级 S_1 ,然后快速跃迁至三重态最低激发态 T_1 。处于 S_1 和 T_1 能级的粒子也可以吸收光子跃迁至高级激发态 S_x 和 T_x 能级,然后以极快的速度分别返回 S_1 和 T_1 能级。此外,处于 S_1 和 T_1 能级的粒子还可能以无辐射跃迁方式回到基态。由于激发态吸收截面大于基态吸收截面,在一定光强范围内,随入射光强的增加, C₆₀ 的吸收也增加,导致透射激光能量密度变化不大,实现了对入射激光的限制。

3 实 验

实验样品 C₆₀ 由中国科学院上海原子核研究所提供,纯度为 99.9%。C₆₀ 甲苯溶液浓度为 7.2×10^{-7} M,盛于厚度为 0.5 cm 的比色皿中。激发光源为 Continuum 公司的 ns-ps 调 Q 倍频 Nd:YAG 脉冲激光系统,入射波长为 532 nm,脉宽为 21 ps,重复频率为 10 Hz。入射激光首先经过减光棒,由分束片分成两束,一束作为参考光,监测入射激光能量密度的变化;另一束作为入射光,经透镜聚焦后入射到介质上输出。透镜焦距为 9 cm,焦点的光斑半径为 36 μ m。入射和透射光能量均用 Laser Precision Corp. 能量/功率计监测,由两个 RJP-370 探头接收。调整减光棒,改变入射光的能量大小,测量透射光能量的变化。同时,在相同样品与入射激光能量范围内,作者改变激发脉宽为 8 ns,测量了样品对 ns 量级的激光脉冲的限制效应。测量结果见图 2。

4 讨 论

应用 C₆₀ 的五能级模型,根据实验条件对实验结果进行计算机模拟,讨论不同三重态吸收截面以及不同脉冲宽度对反饱和吸收光限幅效应的影响。不考虑高激发态上的粒子布居数分布,五能级模型速率方程为^[1]

$$\frac{dn_1}{dt} = -\frac{\sigma_0 I n_1}{h\nu} + \frac{n_2}{\tau_{S0}} + \frac{n_3}{\tau_{T0}} \quad (1)$$

$$\frac{dn_2}{dt} = +\frac{\sigma_0 I n_1}{h\nu} - \frac{n_2}{\tau_{S0}} - \frac{n_2}{\tau_{ST}} \quad (2)$$

$$\frac{dn_3}{dt} = \frac{n_2}{\tau_{ST}} - \frac{n_3}{\tau_{T0}} \quad (3)$$

其中 $h\nu$ 为入射光子能量, n_1 , n_2 和 n_3 分别为 S_0 , S_1 和 T_1 三个能级的分子布居数, I 为入射高斯光束光强。在光的传播方向上,由于样品的吸收,在样品内部的不同位置处 I 不同:

$$\frac{dI}{dz} = -(\sigma_0 n_1 + \sigma_{S_1} n_2 + \sigma_{T_1} n_3) \quad (4)$$

实验参数为:脉冲宽度 $\tau_w = 21$ ps,激发波长 $\lambda = 532$ nm,样品长度 $L = 0.5$ cm,样品浓度 $C = 7.2 \times 10^{-7}$ M。C₆₀ 的有关参数为^[5]: $\sigma_{S_0} = 2.87 \times 10^{-13}$ cm², $\sigma_{S_1} = 1.57 \times 10^{-17}$ cm², $\tau_{S0} = 30$ ns, $\tau_{T0} = 40$ μ s, $\tau_{ST} = 1.2$ ns, $\sigma_{T_1} = 9.22 \times 10^{-18}$ cm²。

改变三重态吸收截面,分别计算了对应不同三重态吸收截面的透射率与输入激光能量密

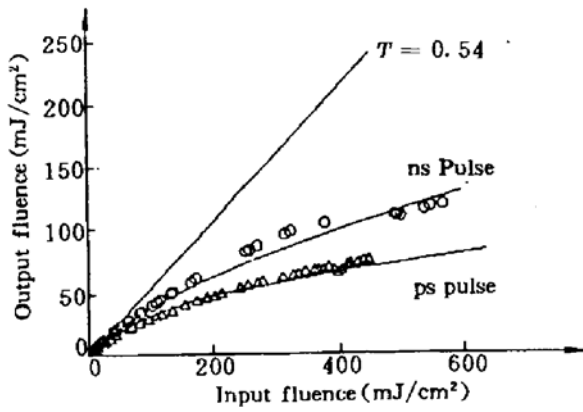


Fig. 2 Curve of output fluence versus input

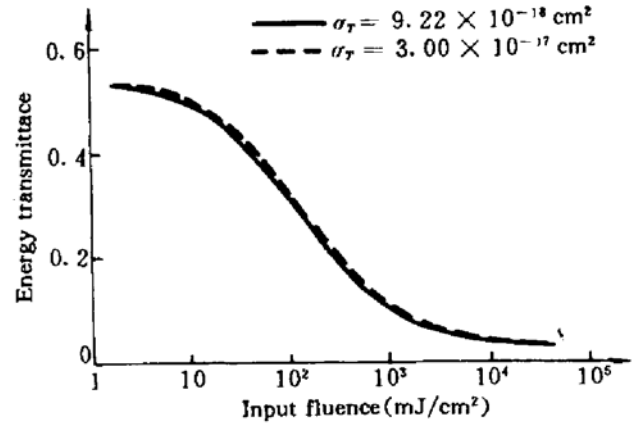


Fig. 3 Curve of transmittance versus input fluence

度的关系曲线,计算结果见图 3。图中实线、虚线分别为 C_{60} 三重态吸收截面 $\sigma_{T_1} = 9.22 \times 10^{-18} \text{ cm}^2$ 和 $3.00 \times 10^{-17} \text{ cm}^2$ 的计算结果。实线和虚线基本一致,这说明了在脉宽为 21 ps 脉冲的激发下,三重态激发态吸收很小,光限幅效应是由于单重态激发态吸收。改变脉冲宽度,分别计算了 C_{60} 甲苯溶液对脉宽为 21 ps 和 8 ns 光脉冲的限幅效果,计算结果见图 2,与实验结果基本符合。很明显, C_{60} 甲苯溶液对 ps 脉冲限幅效果明显优于 ns 脉冲。这是由于在 ps 脉冲激发下,单重态第一激发态至三重态第一激发态系间跃迁时间 τ_{ST} ($\tau_{ST} = 1.2 \text{ ns}$) 及三重态寿命 τ_{T0} ($\tau_{T0} = 40 \mu\text{s}$) 远大于入射脉冲宽度 τ_i ($\tau_i = 21 \text{ ps}$),故三重态上分子布居数很小,单重态激发态吸收占主导地位;而在 ns 脉冲激发下,由于系间跃迁时间比脉冲宽度小,当入射激光脉冲能量比较大时,三重态分子布居数较大,三重态吸收起主要作用,同时由于单重态第一激发态吸收截面大于三重态的吸收截面,所以 C_{60} 甲苯溶液的单重态激发态非线性比三重态强,使得 C_{60} 对 ps 脉冲的限幅效果好。

此外,单重态高级激发态寿命以及第一激发态到振动能级的弛豫时间极短(小于 ps 量级),所以光限幅效应的响应速度也快。

5 结 论

本文研究了 C_{60} 甲苯溶液对 ns, ps 激光脉冲的光限幅效应,结果表明 C_{60} 甲苯溶液对 ps 脉冲的限幅效果好,响应速度快。其光限幅效应的机理主要为单重态激发态吸收。

对于 C_{60} 甲苯溶液,当激发激光脉冲宽度远小于系间跃迁时间时,可以仅考虑单重态激发态吸收的作用而忽略三重态的影响。有关单重态吸收的理论工作正在进行中。

参 考 文 献

- 1 李淳飞,张 雷,王瑞波 等. C_{60} 介质反饱和吸收动力学与光限幅特性. 物理学报, 1993, 42(8): 1236~1244
- 2 L. W. Tutt, Alan Kost. Optical Limiting Performance of C_{60} and C_{70} . *Nature*, 1992, 356: 255~256
- 3 A. Kost, L. Tutt, M. B. Klein *et al.*. Optical Limiting with C_{60} in Polymenthyl Methacrylate. *Opt. Lett.*, 1993, 18(5): 334~336
- 4 杨少辰,龚旗煌,孙宇星 等. 足球烯分子 C_{60} 及 C_{70} 的反饱和吸收性质与光限制效应. 光学学报, 1993, 13(4): 289~293
- 5 T. W. Ebbesen, K. Tanigaki, S. Kuroshima. Excited State Properties of C_{60} . *Chem. Phys. Lett.*, 1991, 181(6): 501~504

Performance of Optical Limiting in C₆₀ with ps Pulse

Song Yinglin Yang Miao Wang Ruibo Yang Kun Zhang Lei Li Chunfei

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

Abstract In this paper, optical limiting in C₆₀-toluene solution for ps pulse is studied and proved to be induced from singlet excited-state-absorption. Compared with optical limiting based on triplet excited-state-absorption, this kind of optical limiting has the advantages of lower clamped energy and quicker response. The experimental results coincide with the theoretical calculations.

Key words C₆₀ singlet state, triplet state, optical limiting, excited-state-absorption

第六届全国基础光学学术报告会在大连市召开

由中国光学学会基础光学专业委员会主办,中国科学院物理研究所、大连理工大学物理系等单位承办的第六届全国基础光学学术报告会于1994年6月21~24日在辽宁省大连市大连理工大学召开。

大会共收到光与物质相互作用、非线性光学、激光物理、激光化学、激光光谱、光计算、光通讯、大气光学、激光生物、激光医学、海洋光学、光学仪器和探测器等各类稿件150多篇,论文提要已选编成册。来自全国各地的高等院校和研究所的75名代表出席了会议。

中国光学学会理事长、中国科学院院士、国际光学委员会副主席母国光教授应邀亲临祝兴,他说进行学术交流和办好光学刊物是很重要的事。换届后的光学学会计划明年4月在北京召开年会,学术交流的内容包括激光、光学工程、光信息和光学材料等四个专题,并争取2000年以前在中国召开一次国际光学代表大会。母国光教授还作了题为“光计算的四十年”的大会报告。报告提纲挈领,深入浅出,扣人心弦。他回顾了从光的属性研究到光的应用性研究的历程,切入到现代光学研究中一个重要领域——光计算。40年来光计算经历了50年代的傅里叶光学;60年代的复杂傅里叶光学;70年代的矩阵运算;80年代的光互联、光数字计算机和人工神经网络等四个阶段。指出发掘光学在计算方面的功能仅仅是开始,但对光计算研究与应用的发展充满信心。其余的大会报告是徐积仁研究员的“分子能量转移的CARS研究”;林钧岫教授的“CO激光器及其应用前景”;邓锡铭院士、郭弘的“稳态光束传输研究中的微分几何方法”以及褚君浩研究员的“现代红外物理的几个新进展”等。尔后设两个分会场进行学术交流。

与会代表参观了大连理工大学三束材料改性国家重点联合实验室、船舶测试实验室、CO激光实验室等。

会议期间还召开了基础光学专业委员会会议。

(赵梅村)