

# 一种新型激发态非线性光吸收的研究\*

杨 淼 王玉晓 杨 昆 李淳飞

(哈尔滨工业大学物理系, 哈尔滨 150001)

**提要** 利用香豆素乙醇溶液的高阶激发态吸收实现了由饱和吸收向反饱和吸收转化的新现象, 并用速率方程理论与多能级分子模型模拟了实验结果, 分析了产生这种效应的条件。

**关键词** 激发态吸收, 饱和吸收, 反饱和吸收

## 1 引言

非线性光吸收意味着介质的吸收系数随入射光强变化而变化。最近 Hughes 和我们分别在 HITCI<sup>[1]</sup> 和金属类卟啉化合物<sup>[2]</sup> 中发现, 在非共振的条件下, 由于高阶激发态吸收的贡献大, 在较弱光强作用下, 材料表现为反饱和吸收, 而在强光作用下, 材料的非线性吸收特性会向饱和吸收转化。本文在以上研究基础上, 在香豆素乙醇溶液样品中首先发现由饱和吸收向反饱和吸收转化的新现象, 并用多能级分子模型对上述现象进行了模拟和分析, 给出饱和吸收向反饱和吸收转化的条件, 理论模拟与实验结果相一致。

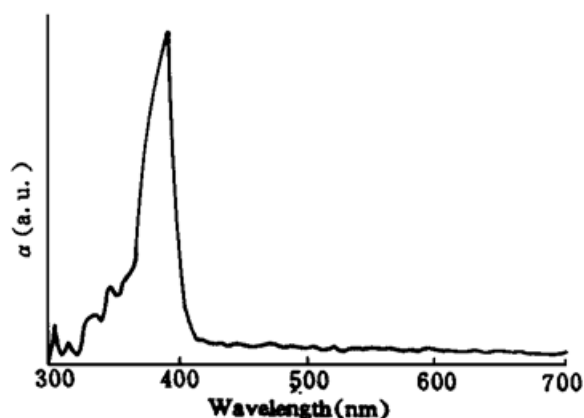


Fig. 1 Linear absorption spectrum of the solution of Coumarin in alcohol

## 2 实验

实验采用的样品为香豆素乙醇溶液, 放置在厚度为 5 mm 的比色皿中, 其线性吸收谱如图 1 所示。355 nm 位于线性吸收谱的吸收峰附近, 因此在此波长处基态吸收截面应大于激发态吸收截面。

实验采用直接透射测量法测量样品透射率随入射光强的变化。由 Continuum Np70 Nd:YAG 激光系统发出的 4 ns 脉冲激光, 经三倍频后输出波长为 355 nm 的激光被分为两束: 一束直接送入 Rjp-735 能量计探头, 另一束经透镜聚焦后入

射至样品, 再将透射光送入 Rjp-735 能量计另一探头。实验结果如图 2 所示。由测量结果可以看出, 在较低入射脉冲能量作用下, 样品表现为饱和吸收效应, 而在高脉冲能量作用下, 发生了饱和吸收向反饱和吸收转化的过程。这种现象产生的原因简单解释如下, 在弱光强作用下, 由于

\* 国家自然科学基金、黑龙江省自然科学基金资助项目。

入射激光波长处于吸收峰附近, 第一激发态吸收截面小于基态吸收截面, 因此材料呈现出饱和吸收特性; 当入射光强逐渐增加而达到饱和时, 若不考虑高激发态的作用, 第一激发态与基态粒子数趋于相等, 但是由于对于我们所用材料而言, 高激发态寿命较长, 可与入射激光脉宽相比, 因此其作用不能忽略。此时基态粒子数密度由于饱和吸收作用会被抽空, 高激发态会有一些的粒子数布居; 而且高阶激发态吸收截面大于第一激发态吸收截面, 因此在更高光强作用下出现反饱和吸收, 非线性吸收特性由饱和吸收转化为反饱和吸收。下一节中将利用多能级模型的速率方程理论, 对高阶激发态的作用进行详细分析。

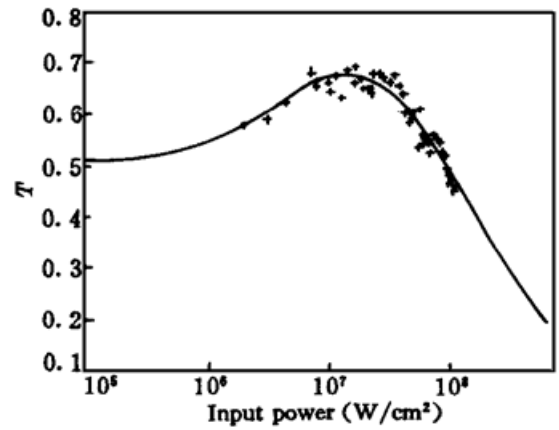


Fig. 2 Transmittance of sample vs intensity of input laser beam

### 3 讨 论

为了分析各能级对非线性吸收的贡献, 我们采用仅包含单重激发态的简化四能级<sup>[1]</sup>对上述分子系统进行描述。通过对四能级模型速率方程组和传播方程的联立求解, 得到各能级粒子数密度随时间的变化关系, 以及各能级粒子吸收光能随时间的变化关系, 分别如图3和图4所示, 其中入射激光峰值功率密度为 $10^8 \text{ W/cm}^2$ 。理论计算结果表明, 当入射激光峰值功率密度足够大时, 高阶激发态将会有一定的粒子数布居, 其吸收将会对非线性吸收有所贡献。若其吸收截面比第一激发态吸收截面大, 则高激发态的吸收将在非线性吸收占主导地位, 使非线性吸收由饱和吸收向反饱和吸收转化。计算中所用参数如表1表示。其中[a]参数为利用理论对本实验结果进行拟合得到的。

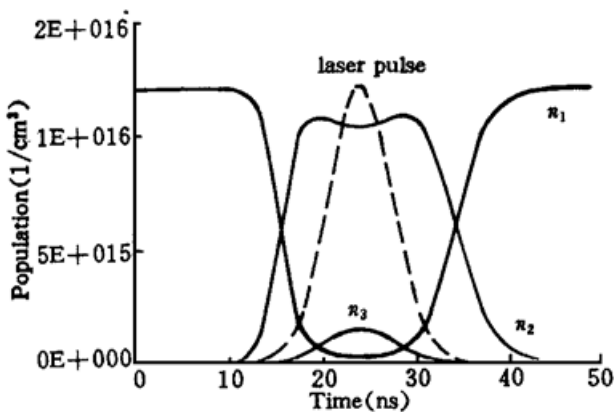


Fig. 3 Populations in  $S_1$ ,  $S_2$  and  $S_3$  versus time during a single light pulse under an input intensity  $I_0 = 10^8 \text{ W/cm}^2$

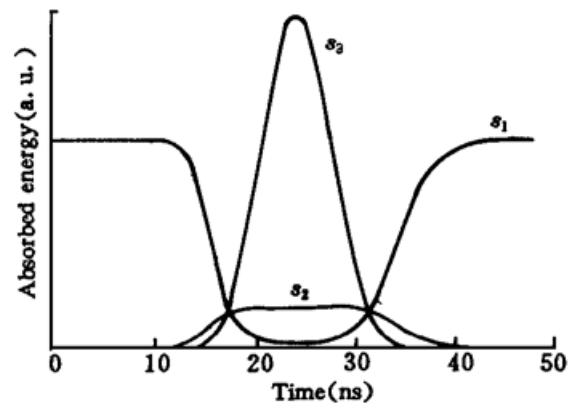


Fig. 4 Absorbed light intensities of molecules in  $S_1$ ,  $S_2$  and  $S_3$  versus time during a single laser pulse under an input intensity  $I_0 = 10^8 \text{ W/cm}^2$

由上述理论结果可以得到这样的结论: 当样品满足在入射激光波长处第一激发态吸收截面 ( $\sigma_s$ ) 小于基态吸收截面( $\sigma_0$ ) 和高阶激发态吸收截面( $\sigma_{ss}$ ) 时, 样品就会表现出由饱和吸收向

反饱和吸收转化的效应。利用上述参数计算得到样品透射率  $T$  随入射光强  $I$  变化的关系, 如图 2 中实线所示。可以看到理论拟合曲线与实验结果符合得很好。

**Table 1 Photophysical parameters in this experiment**

Wavelength of incident laser (nm)	355
Concentration of sample (Mol/L)	$2 \times 10^{-5}$
Thickness of sample (cm)	0.5
Linear absorption coefficient of sample ( $\text{cm}^{-1}$ )	1.39
Linear transmittance of sample	50%
Lifetime of the first excited-state (ns)	$2.0^{[3]}$
Lifetime of the higher excited-state (ps)	$35.1^{[3]}$
Absorption cross-section of the ground state ( $\text{cm}^2$ )	$1.18 \times 10^{-16[3]}$
Absorption cross-section of the first excited-state ( $\text{cm}^2$ )	$2.5 \times 10^{-17[a]}$
Absorption cross-section of the higher excited-state ( $\text{cm}^2$ )	$1.5 \times 10^{-16[a]}$

### 参 考 文 献

- 1 S. Hughes, G. Spruce, B. S. Wherett *et al.*. The saturation limit to picosecond, induced absorption in dye. *Opt. Commun.*, 1993, **100** ·113
- 2 Jinhai Si, Miao Yang, Yuxiao Wang *et al.*. Nonlinear excited state absorption in cadmium texaphyrin solution. *Appl. Phys. Lett.*, 1994, **64**(23) ·3083
- 3 S. Speise, N. Shakkour. Photoquenching parameters for commonly used laser dyes. *Appl. Phys. B*, 1985, **38** ·191

## Study of Novel Excited-state Nonlinear Absorption

Yang Miao Wang Yuxiao Yang Kun Li Chunfei

(Department of Physics, Harbin Institute of Technology, Harbin 150001)

**Abstract** The novel phenomena of the turnover from saturable absorption to reverse saturable absorption have been demonstrated by using the solution of Coumarin in alcohol. The conditions to realize this effect have been analyzed utilizing a multi-energy-level model.

**Key words** excited-state absorption, saturable absorption, reverse saturable absorption