

甲酚紫非线性光学性质的研究

申铨国 张铁强 郑龙江

(吉林工业大学应用物理系, 长春 130025)

提 要

报道了甲酚紫染料非线性光学性质的实验研究方法及其结果. 利用简并四波混频技术, 测量得到甲酚紫甲醇溶液(浓度为 $5 \times 10^{-4} \text{ M}$)的三阶非线性极化率 $\chi^{(3)}$ 为 $2.0 \times 10^{-10} \text{ esu}$. 此外, 利用不同强度皮秒脉冲相关技术得到了甲酚紫甲醇溶液的吸收恢复时间 τ_{21} 为 163 ps.

关键词 甲酚紫染料, 简并四波混频, 皮秒脉冲相关技术.

1 引言

甲酚紫(cresyl violet)是一种常用的有机激光染料. 目前对它的研究多集中于一般光学性质, 对于甲酚紫的非线性光学性质的研究尚十分缺乏. 本文报道了对甲酚紫甲醇溶液的两个非线性光学参量的测量: 利用简并四波混频(DFWM)技术测量了甲酚紫甲醇溶液位相共轭反射率 R 随泵浦光强度变化的关系, 在选择弱泵浦光强度情况下, 计算出甲酚紫的三阶非线性极化率 $\chi^{(3)}$; 此外, 提出了一种测量甲酚紫吸收恢复时间的新方法—不同强度皮秒脉冲相关技术, 并且与其它方法测量得到的结果进行对比, 说明此种方法的正确性.

2 $\chi^{(3)}$ 的测量与计算

2.1 实验装置与结果

进行四波混频实验的装置如图1所示, 实验使用的样品是由美国 Exiton 化学有限公司生产的甲酚紫 670, 将其放在甲醇溶液中(浓度为 $5 \times 10^{-4} \text{ M}$), 样品池的厚度为 1 mm. 应用日本岛津 UV-3000 型光谱仪测量甲酚紫甲醇溶液的吸收峰值波长为 594 nm.

从调 Q YAG 激光器发出的波长为 $1.06 \mu\text{m}$ 激光, 经 KDP 晶体倍频变为 $0.53 \mu\text{m}$ 激光, 再经分束器 BS_1 (45%) 和 BS_2 (80%) 以及反射镜 M_2 产生两束传播方向相反而强度相等的泵浦光(称为前向泵浦光 f 和后向泵浦光 b), 又经反射镜 M_1 得到与前向泵浦光传播方向有一很小夹角(本实验中为 2°) 且强度较弱的探测光 P . 这三个光脉冲同时到达样品上. 与探测光传播方向相反的位相共轭光由分束器 BS_3 (50%) 进行挑选并由光电倍增管 PMT 检测, 使光信号变成电信号, 再将其送入 Boxcar 积分器进行处理, 最后由 X-Y 记录仪记录. 在本实验中, 所用激光的脉宽为 15 ns, 倍频光单脉冲能量为 80 mJ, 重复频率为 1 Hz. 利用两个偏振片 P_2 和 P_3 的转动改变泵浦光的强度, 测量出位相共轭反射率 R 随泵浦光强度变化曲线(对数-对数曲线)如图2所示. 当泵浦光强度约为 3 MW/cm^2 时, 有最大位相共轭反射率 4.8%. 而在低泵浦

光强度 ($< 0.8 \text{ MW/cm}^2$) 时, 曲线近似为直线.

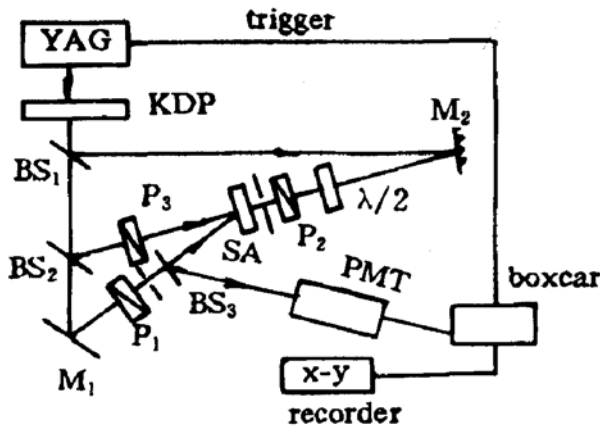


Fig. 1 Apparatus used in DFWM experiment

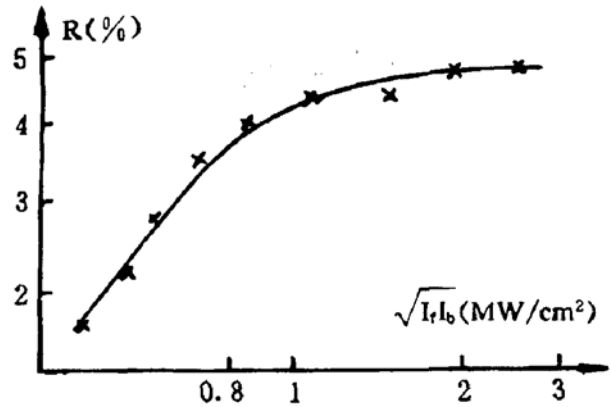


Fig. 2 The phase conjugate DFWM reflection power versus average pump intensity

2.2 计算 $\chi^{(3)}$

按图 1 装置, 探测光、位相共轭光及两个泵浦光在样品中发生简并四波混频过程. Yariv 等人首先给出四波混频理论分析, 据此得到位相共轭反射率 R 与平均泵浦光强度 $\sqrt{I_p I_b}$ 的关系是^[1]

$$R = \frac{4 |D^*|^2 \text{tg}^2(\text{Del}) \exp(at)}{[\text{atg}(\text{Del}) + 2\text{De}]^2}, \tag{1}$$

$$D^* = \frac{3\omega}{4nc} \chi^{(3)} \sqrt{I_p I_b}, \quad \text{De} = [|D|^2 \exp(at) - (\alpha/2)]^{1/2}.$$

式中 l 为样品厚度, n 为折射率, c 为真空中光速, ω 为圆频率. 在低泵浦光强度情况下, $\text{tg}(\text{Del}) \approx \text{Del}$, 因此(1)式化简为

$$|\chi^{(3)}| = \frac{2n^2 c^2 \epsilon_0}{3\omega L \sqrt{I_p I_b}} R^{1/2}, \quad L = \frac{2l}{\alpha l + 2} \exp(-\frac{\alpha l}{2}) \tag{2}$$

式中 L 称为有效相互作用长度. 由图 2 得出直线段的斜率为 2, 利用(2)式估计出甲酚紫三阶非线性极化率 $\chi^{(3)}$ 约为 $2.0 \times 10^{-10} \text{ esu}$.

由于(2)式是在低泵浦光强度情况下的近似, 采用图 2 中低泵浦光强度 ($< 0.8 \text{ MW/cm}^2$) 所对应的曲线部分计算 $\chi^{(3)}$. 对较高泵浦光强度, 可采用(1)式进行计算, 只不过计算较复杂而已. 所以, 这里得到 $\chi^{(3)}$ 的实验方法是具有普遍意义的.

3 τ_{21} 的测量与计算

3.1 实验装置与结果

利用不同强度皮秒脉冲相关技术测量甲酚紫样品透射率 T 的实验装置如图 3 所示. 以 Ar^+ 离子锁模激光器 (波长为 514.5 nm , 重复频率为 82 MHz) 同步泵浦染料激光器 (染料为 $R6G$), 组成短脉冲光源, 输出波长为 590 nm , 脉冲宽度为 $t_p \leq 3 \text{ ps}$. 将光束分成激发、探测两束光 (强度比为 $1000:4$) 入射到前述甲酚紫甲醇溶液样品上. 在探测光的光路上加由步进电机驱动的可变延迟线, 激发光束用 3 kHz 频率斩波. 于是样品对强激发光的吸收产生一个 3 kHz 的调制, 弱探测光被锁相到这个调制进行放大, 透过样品后的弱探测光用光电倍增管探测, 由 X-Y 记录仪记录.

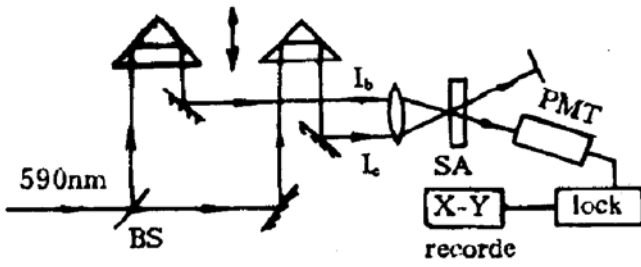


Fig. 3 Apparatus used in the measurement of transmissivity

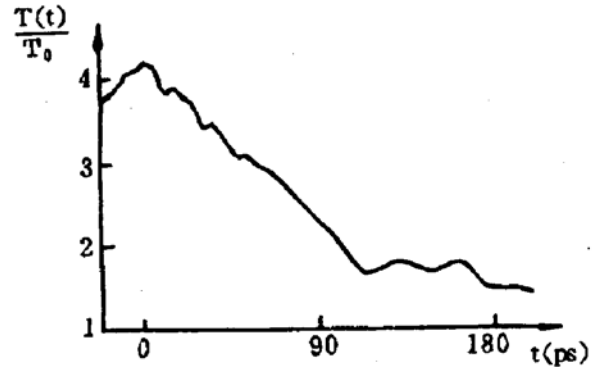


Fig. 4 The phase conjugate relative transmissivity versus relaxation time

图 4 给出了甲酚紫甲醇溶液的相对透过率 $T(t)/T_0$ (T_0 是 $t \rightarrow \infty$ 时的透过率) 随延迟时间 t 的变化曲线. 从图中看到: $t = 0$ 时有最高相对透射率 $T(0)/T_0 = 4.2$. 从峰值衰减到 e^{-1} 处这段曲线决定了甲酚紫染料的吸收恢复时间. 在这段曲线上取点, 对相对透射率取两次对数, 于是得到 $\ln[\ln(T(t)/T_0)]$ 与 t 的关系曲线, 如图 5 所示.

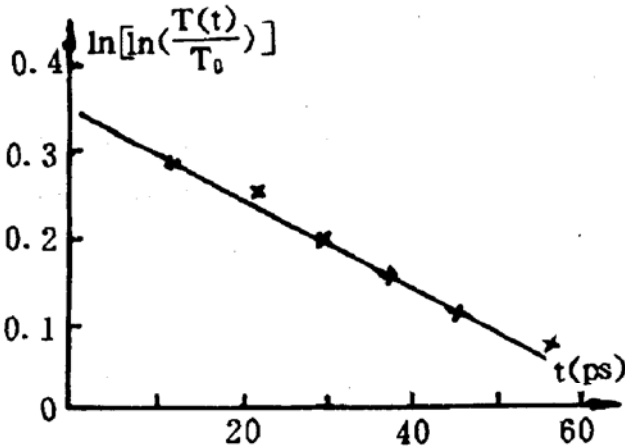


Fig. 5 The phase conjugate logarithmic relative transmissivity versus relaxation time

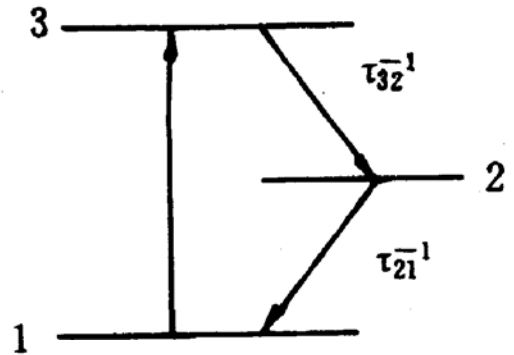


Fig. 6 The cresyl violet energy level diagram

3.2 计算 τ_{21}

对于甲酚紫染料, 其三能级模型如图 6 所示. 体系吸收激发光的能量后, 由基态进入最低激发态, 吸收截面为 A_{13} . 通过无辐射跃迁从单重态 3 以极快速率 τ_{32}^{-1} 弛豫到三重态 2, 从三重态 2 弛豫到基态的速率 τ_{21}^{-1} 决定了染料的恢复时间 τ_{21} .

对于一个被激发光 I_e 作用的厚度为 L 的染料层, 当有一与激发光脉冲适当延迟 t 的探测光脉冲 I_b 入射到染料层时, 利用速率方程可以得到相对透射率为⁽²⁾

$$\frac{T(t)}{T_0} = \exp\left[A_{13}N_0L \exp\left(-\frac{t}{\tau_{21}}\right)\right] \quad (3)$$

N_0 是 $t = 0$ 时基态上粒子数密度. 取对数得

$$\ln \left[\ln \left(\frac{T(t)}{T_0} \right) \right] = \ln(A_{13} N_0 L) - \frac{t}{\tau_{21}} \quad (4)$$

这正是直线方程. 由图 5 算出直线的斜率并与(4)式比较得到甲酚紫染料在甲醇溶液中的吸收恢复时间为 163 ps. 这个结果与日本 Nakatsuka 等人用非相干光门控光克尔开关荧光寿命法测量得到的数值(为 160 ps)⁽³⁾十分接近, 因此是可信的.

参 考 文 献

- [1] A. Yariv *et al.*, Amplified reflection, phase conjugation, and oscillation in degenerate four-wave mixing. *Opt. Lett.*, 1977, 1(1-6):16~18
- [2] D. Von Der Linde *et al.*, Recovery Time of Saturable Absorbers for 1.06 μm . *IEEE J. Quant. Electron.*, 1973, QE-9(9):960~961
- [3] H. Nakatsuka *et al.*, Incoherent light grating optical Kerr shutter for fluorescence lifetime measurement. *Opt. Commun.*, 1988, 69(2):169~171

Nonlinear optical property of cresyl violet

SHEN Xuanguo ZHANG Tieqiang ZHENG Longjiang

(Department of Applied Physics, JiLin University of Technology, Changchun 130025)

Abstract

This paper studies the nonlinear property of cresyl violet. By using degenerate four-wave mixing, the 3rd nonlinear electric susceptibility $\chi^{(3)} = 2.0 \times 10^{-10}$ esu have been obtained. Afterwards, its relaxation time was measured as $\tau_{21} = 163$ ps, by using pulse correlation technique.

Key words cresyl violet, degenerate four — wave mixing, pulse correlation technique.