

# 利用不完全自锁模激光研究 $C_{60}$ 的反饱和和吸收效应\*

罗 挺 赵继然 吴正亮 谢燕燕 江敏华 林福成

(中国科学院上海光学精密机械研究所, 上海 201800)

## 提 要

本文报道首次采用色心晶体的不完全自锁模激光(1064 nm)对  $C_{60}$  分子反饱和和吸收效应的研究, 实验结果与采用平均过程的研究方法是一致的, 文中还讨论了  $C_{60}$  分子反饱和和吸收效应产生的原因.

**关键词** 色心晶体, 自锁模,  $C_{60}$  分子, 反饱和和吸收效应.

## 1 引 言

从1990年 Kratschmer 等人<sup>[1]</sup>和 Haufler 等人<sup>[2]</sup>分别采用电阻法及电弧成功地合成了毫克量  $C_{60}$  和  $C_{70}$  以来, 对  $C_{60}$  和  $C_{70}$  的研究引起了广泛注意, 研究日渐深入. 非线性光学性质的研究进展迅速, 目前已有多项报道出现<sup>[3~5]</sup>.

本文报道对纯  $C_{60}$  甲苯溶液的光限制效应的研究, 实验方法是利用色心晶体的不完全自锁模激光对  $C_{60}$  的光限制效应进行实时测量. 实验结果表明,  $C_{60}$  甲苯溶液在红外 1064 nm 的光限制效应为双光子过程, 一个几十纳秒宽的不完全锁模调 Q 激光脉冲, 由于  $C_{60}$  的光限制效应而变得平滑.

## 2 $C_{60}$ 分子的反饱和和吸收特性

一般说来, 有机分子的电子结构可以用如图1所示的五能级模型来描述<sup>[6]</sup>, 在这一能级结构中, 低激发时的样品吸收是单重态的基态  $^1S_0$  到单重态的激发态  $^1S_1$  的跃迁,  $^1S_1$  态的粒子可能通过弛豫方式回到基态  $^1S_0$ , 也可能跃迁到更高的激发态  $^1S_2$  上, 或通过碰撞转移到较低能级的三重态  $^3T_1$ . 为了实现反饱和吸收(RSA), 激发态  $^1S_1$  或较低的重态  $^3T_1$  的吸收截面必须大于基态  $^1S_0$  的吸

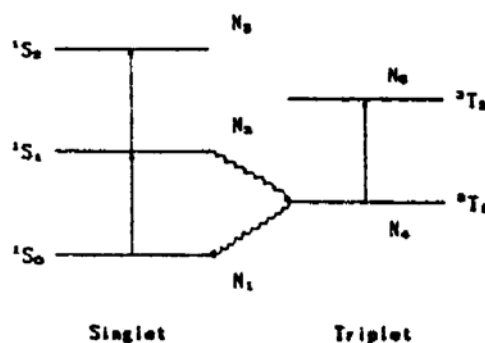


Fig. 1 The typical energy-level diagram showing the relationship between singlet and triplet states

收稿日期:1993年3月10日;收到修改稿日期:1993年8月30日

\* 本工作得到 863 高技术基金的部分资助

收截面. 为了使 $^3T_1$ 态上积累更多的粒子, 系统的交叉弛豫时间( $^3T_1$ 到 $^1S_0$ )应大于系统内部弛豫时间( $^1S_1$ 到 $^1S_0$ 和 $^3T_2$ 到 $^3T_1$ ). 另外, 对短脉冲, 要求 $^1S_1$ 上的粒子很快通过无辐射跃迁转移到 $^3T_1$ 上去, 这样三重态间的跃迁吸收将起主要作用. 由此得出, 随着激光能量的增加, 由于三重态的吸收参与造成样品的透过率随着光强而减少, 使样品透过光能量基本保持不变, 从而出现反饱和吸收过程, 产生了光限制效应.

$C_{60}$  被发现第一激发单重态 $^1S_1$ 上的粒子很快弛豫到最低激发三重态 $^3T_1$ . Argonne<sup>[7]</sup> 研究小组发现  $C_{60}$  这种过程的速率为  $3.0 \times 10^{10} \text{ s}^{-1}$ , 且  $^3T_1$  的寿命约为  $40 \mu\text{s}$ <sup>[8]</sup>. 电子参量共振方法测量表明:  $^3T_1$  的寿命为  $0.29 \sim 0.41 \text{ ms}$ . 由于三重态 $^3T_1$ 的寿命长且跃迁截面比单重基态 $^1S_0$ 的跃迁截面大,  $C_{60}$  将会显示出反饱和吸收特性. 美国休斯公司 Tutt 等人<sup>[5]</sup>报道了在  $C_{60}$  甲苯溶液中的光限制效应的初步实验结果; 北京大学杨少辰等人<sup>[4]</sup>用 Q 开关 Nd:YAG 激光器的倍频 532 nm 激光对纯  $C_{60}$  及  $C_{70}$  的甲苯溶液的反饱和吸收, 测量了光限幅的阈值功率及与样品浓度的关系.

### 3 实验结果及讨论

本文报道的  $C_{60}$  甲苯溶液在红外范围 1064 nm 的光限制效应为双光子过程, 一个几十纳秒宽的不完全锁模调 Q 激光脉冲, 由于  $C_{60}$  的光限制效应变得平滑. 实验所用的  $C_{60}$  粉末是用高压液相色谱分离法获得, 并溶于甲苯中, 甲苯溶液的浓度为  $3 \times 10^{-4} \text{ M}$ , 厚 5 mm 的染料盒装有  $C_{60}$  溶液作为非线性介质, 用色心晶体 (LiF) 调 Q 的 Nd:YAG 激光器作为光源. 通过选取色心晶体透过率、改变泵浦灯的电功率和光学谐振腔的调整, 激光器可控制在 Q 开关状态或不完全锁模状态. Q 开关激光脉冲波形是光滑的, 脉冲宽度为 25 ns, 不完全锁模时, 是以调 Q 激光脉冲为包迹, 叠有锁模尖峰脉冲序列, 单峰宽度约为几个 ns, 两峰间隔为 5 ns (探测器分辨率为 2.5 ns). 实验中采用不完全锁模调 Q 激光的优点是锁模尖峰相当于为非线性样品的输入、输出光波形的对应位置作了标记. 实验光路如图 2 所示, 不完全被动自锁模脉冲经一空间滤波器后, 经透镜聚焦后入射到样品上, 利用二个光电探测器  $D_1$  和  $D_2$  (其中一个探测器用长电缆延时) 同时探测输入光和输出光, 然后送入存储示波器就可直接观察到光限制效应.

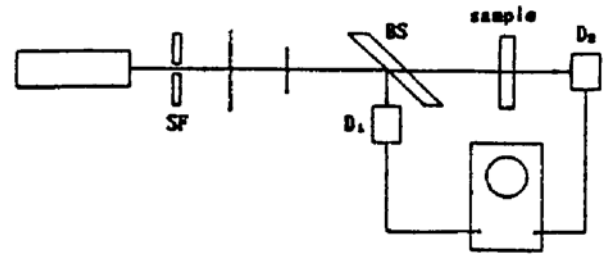


Fig. 2 Experimental setup

光限制效应的结果如图 3 所示, 右边为不完全锁模调 Q 输入的 1064 nm 激光信号, 左边是经非线性介质  $C_{60}$  溶液后的输出信号. 可以看出, 不完全锁模调 Q 脉冲波形被平滑, 比较输入输出光波形的前沿, 可以得出  $C_{60}$  甲苯溶液的反饱和吸收特性如图 4 所示. 图 3 中入射-出射光脉冲波形的后沿关系则更为复杂, 这是由显示系统和非线性介质自身时间响应的影响. 有趣的是, 本文实验结果是实时测量值不同于文献<sup>[4]</sup>和<sup>[5]</sup>, 他们的输入-输出关系是由过程平均以  $\text{J}/\text{cm}^2$  单位给出的. 在本文实验中, 用一个不完全锁模调 Q 脉冲完成全部测量, 能量密度约为  $0.8 \text{ J}/\text{cm}^2$ . 实验结果表明, 在红外区  $\lambda = 1064 \text{ nm}$ ,  $C_{60}$  溶液的反饱和吸收, 双光子过程起主要作用, 光限制特性的时间响应是由至三重态间的弛豫过程 ( $^1S_1 \rightarrow ^3T_1$ ) 决定的, 从本文实验来看, 不长于几个 ns.

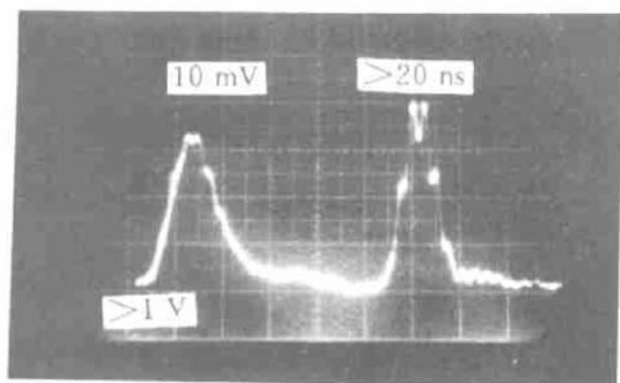


Fig. 3 The right side is an incomplete self-mode-locked input signal, and the left side is the output signal

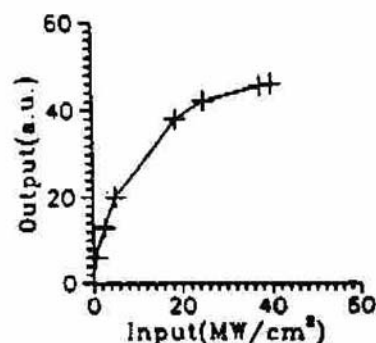


Fig. 4 The experimental result of the reverse saturation property

### 参 考 文 献

- [1] W. Kratscher, K. Fostiropoulos, Q. R. Huffman, Evident for the presence of the  $C_{60}$  molecule. *Nature*, 1990, 347: 354
- [2] R. E. Haufler, J. Conceicao, L. P. E. Chibante *et al.*, Efficient production of  $C_{60}$  (buckminsterfullerene),  $C_{60}H_{24}$ , and the solvated buckide ion. *J. Phys. Chem.*, 1990, 94(24): 8634~8636
- [3] Z. H. Kafafi, F. J. Bartoli, J. R. Lindle *et al.*, Comment on large infra-red nonlinear optical response of  $C_{60}$ . *Phys. Rev. Lett.*, 1992, 68(17): 2704
- [4] 杨少辰, 龚旗煌, 夏宗炬等, 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] L. W. Tutt, A. Kost, Optical limiting performance of  $C_{60}$  and  $C_{70}$  solutions. *Nature*, 1992, 356: 255~256
- [6] L. W. Tutt, S. W. McCahon, Reverse saturable absorption in metal cluster compounds. *Opt. Lett.*, 1990, 15(12): 700~702
- [7] M. R. Wasielewski, M. P. O'Neil, K. R. Lykke *et al.*, Triplet states of fullerenes  $C_{60}$  and  $C_{70}$ : electron paramagnetic resonance spectra, photophysics, and electronic structures. *J. Am. Chem. Soc.*, 1991, 113: 2774~2776
- [8] S. R. Flom, R. G. S. Pong, F. J. Bartoli *et al.*, Resonant nonlinear optical response of the fullerenes  $C_{60}$  and  $C_{70}$ . *Phys. Rev. B.*, 1992, 46(23): 1598~1601

## Study of reverse saturable absorption of $C_{60}$ with incompletely self-mode-locked laser

Luo Ting      Zhao Jiran      Wu Zhengliang      Xie Yanyan  
 Jiang Minhua      Lin Fucheng

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

(Received 10 March 1993; revised 30 August 1993)

### Abstract

The reverse saturable absorption effect of fullerene  $C_{60}$  studied with incompletely self-mode-locked laser (1064 nm) is reported for the first time to our knowledge. The real-time experimental result is the same as that observed in an average process. The reverse saturable absorption mechanism of fullerene  $C_{60}$  is discussed.

**Key words** Color center crystal, Self-mode-locking, Fullerene molecules, Reverse saturable absorption effect.