

利用双色光子存储方法测量偶氮分子 甲基橙和乙基橙的亚稳态寿命*

武鹏飞** 费浩生 魏振乾

(吉林大学物理系, 长春 130023)

摘 要 提出了用双色光子存储来测量寿命的新方法: 逐渐延长关闭预激发光与打开写入光束的时间间隔, 通过分析衍射信号的变化得到相关能级的寿命。用此方法测得偶氮分子甲基橙和乙基橙的亚稳态寿命分别为 4 s 和 2.7 s。

关键词 双色光子, 光存储, 能级寿命。

1 引 言

众所周知, 对原子、分子某一能级寿命的测量, 一般都要依赖于对荧光或磷光强度的跟踪测量, 如相移法、脉冲激发技术、单光子延迟相关技术^[1,2]等等。但在许多情况下, 被测样品的荧光或磷光强度一般都很弱, 这就给测量工作带来一定困难或使测量精度受到限制。

作者在进行短波光激发下的长波光存储实验过程中, 利用亚稳态粒子数衰减对光存储衍射信号的影响, 直接通过对衍射信号的分析得到甲基橙、乙基橙两种有机分子的亚稳态寿命。据作者所知, 用存储方法来测量能级寿命在国内外还未见报道。

2 原 理

有机偶氮染料分子甲基橙、乙基橙具有图 1 所示的能级结构, 其中 S_1 至 S_2 的跃迁对 514 nm 吸收, 对 633 nm 不吸收, T_1 至 T_2 的跃迁对 633 nm 吸收, 514 nm 足够强时也将吸收。

实验上所用的样品是把甲基橙、乙基橙分子分别均匀掺杂在聚乙烯醇(PVA)中制成的甲基橙-PVA 和乙基橙-PVA 两种膜片, 其中 PVA 是基质, 对可见光不吸收, 它的作用是隔离甲基橙或乙基橙分子, 防止它们结成大的晶粒。样品中的甲基橙、乙基橙分子在光的作用下, 将发生变化。

实验原理结构如图 2 所示。光束 I 为 Ar^+ 514 nm 激发光束, I_1 、 I_2 、 I_3 为 He-Ne 633 nm 光束, 其中 I_2 和 I_3 为写入光束, I_1 是读出光束。样品首先在 514 nm 激发光作用下(或是非相干

* 国家科委 863 高科技项目及国家自然科学基金资助课题。

** 现地址: 南开大学现代光学研究所, 天津 300071。

收稿日期: 1993 年 11 月 7 日; 收到修改稿日期: 1994 年 4 月 7 日

短波光源),使样品膜片中的甲基橙或乙基橙分子从基态 S_1 跃迁至激发态 S_2 , S_2 态上的分子一部分会弛豫到基态 S_1 , 另一部分将跃迁至亚稳态 T_1 , T_1 态上的分子在 514 nm 光功率足够高时也可能布居到激发态 T_2 。这时如果两束相干的 633 nm 光 I_2 、 I_3 照射在样品表面, 将会在样品内形成明暗相间的干涉条纹。在干涉条纹的亮区, 处在 T_1 态的分子将被 633 nm 激发到 T_2 态, 而暗区的分子不变化, 这样在样品中将形成 T_1 和 T_2 态分子数布居不同的空间调制, 对于 633 nm 探测光 I_1 而言, 这种空间的变化将引起样品的吸收系数和折射率在空间变化, 即形成了吸收光栅和位相光栅。

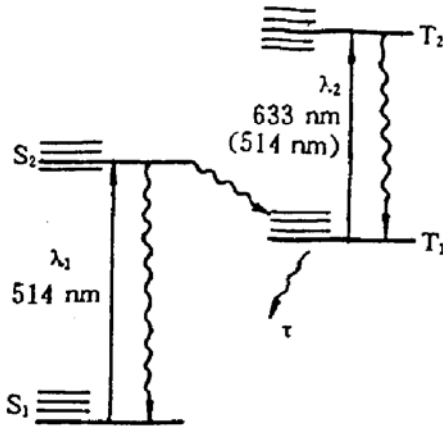


Fig. 1 Energy level for MO and EO

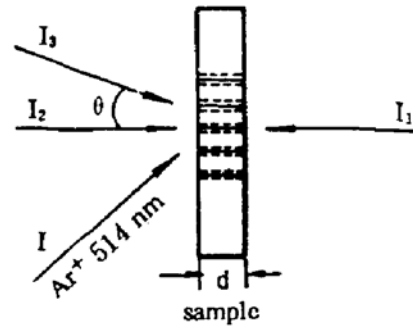


Fig. 2 Geometry for biphoton storage

为了简单起见, 假设各光束均为平面波, 采用 Kogelnik 的全息光栅衍射效率表达式^[3]:

$$\eta = \left(\frac{I_{\text{信号}}}{I_{\lambda}} \right) = \left[\sin^2 \left(\frac{\pi n d}{\lambda \cos \theta} \right) + \sinh^2 \left(\frac{\alpha d}{2 \cos \theta} \right) \right] \exp \left(- \frac{2 \alpha_0 d}{\cos \theta} \right), \quad (1)$$

式中 d 为样品厚度, α_0 为吸收系数平均值, λ 为探测光波长, 方括号中的第一项是由于折射率的变化 n 形成(即位相光栅), 第二项是由于吸收系数的变化 α 产生的(即吸收光栅)。由于衍射效率很小 ($\eta \leq 0.01$), 方程(1)可简化为:

$$\eta = A n^2 + B \alpha^2, \quad (2)$$

式中 $A = (\pi d / \lambda \cos \theta)^2 \exp(-2\alpha_0 d / \cos \theta)$, $B = (d / 2 \cos \theta)^2 \exp(-2\alpha_0 d / \cos \theta)$ 皆为常数。即衍射效率 η 正比于折射率变化和吸收系数变化的幅值的平方。

当关闭 514 nm 泵浦光时, T_1 和 T_2 态上分子数的布居将发生变化, 这样导致 n 和 α 也随时间变化, 方程(2)相应变为:

$$\eta(t) = A n^2(t) + B \alpha^2(t) \quad (3)$$

由于吸收系数的变化与 T_1 、 T_2 态的粒子数变化 N_1 、 N_2 有如下关系:

$$\alpha(t) = \sigma(\lambda) [N_1(t) - (g_1/g_2)N_2(t)],$$

$\sigma(\lambda)$ 为 T_1 、 T_2 间的吸收截面, 一般情况下为常数, 它只与分子的属性和被吸收光的波长有关。 g_1 、 g_2 为 T_1 、 T_2 态的统计权重, 也是常量。由于 T_1 态寿命较长, 粒子数主要被激发到 T_1 ; 另外在关闭激发光 514 nm 后, 靠它激发到激发态 T_2 的分子会很快回到亚稳态 T_1 , 同时写入光强比较弱 (0.1 W/cm^2), 则此时 $N_2 \ll N_1$, 即:

$$\alpha(t) \propto N_1(t). \quad (4)$$

由(4)式和(3)式可得 $\eta(t) = A n^2(t) + B' N_1^2(t)$, 其中 B' 为常数, 即:

$$N_1(t) \propto [\eta(t) - An^2(t)]^{1/2}. \quad (5)$$

(5)式说明在除去折射率光栅影响后, t 时刻的衍射效率平方根正比于此时的亚稳态粒子数光栅变化值 $N_1(t)$ 。但是如何消除位相光栅的影响呢? 在实际中是这样处理的: 由于位相光栅是由分子取向排列所引起^[4], 它在形成过程中(约几秒钟)要慢于粒子数光栅(吸收光栅)。当关闭 514 nm 激发光后, 在亚稳态粒子数衰减之前, 打开 633 nm 写入光束, 此时衍射信号在最初的时间(约 1 秒内), 主要是粒子数布居形成的吸收光栅的贡献, 因为由分子取向引起的位相光栅还来不及响应。从小到大依次选择不同的关闭激发光与打开写入光束的时间间隔 t (即粒子数光栅衰减的时刻), 相应测得起始 1 秒时刻的衍射效率 $\eta(t)$, 这个值的平方根 $\sqrt{\eta(t)}$ 就正比于衰减到 t 时刻的亚稳态粒子数 $N_1(t)$ 。这样, $\sqrt{\eta}$ 按时间间隔 t 的变化曲线就描绘了亚稳态粒子数衰减情况。

3 实 验

图 3 为实验装置图, 快门 1 控制 633 nm 写入光 2 和 3, 各为 0.1 W/cm^2 , 快门 2 控制激发光束(514 nm), 功率为 0.3 W/cm^2 。样品是甲基橙-PVA 和乙基橙-PVA 两种膜片。衍射信号 4 经过半反镜 M_3 进入接收装置。

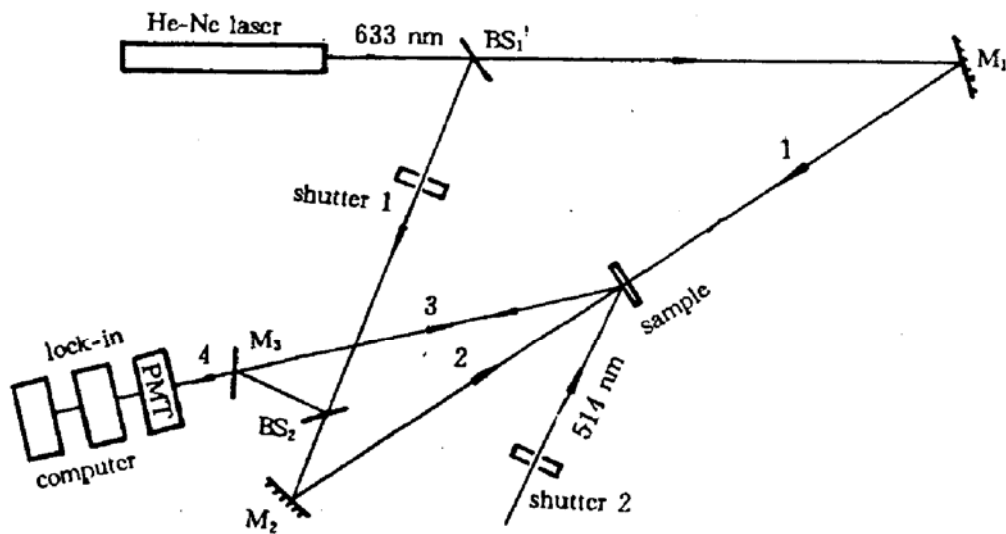


Fig. 3 Experimental set-up of measuring metastable state life-time using biphoton storage

改变关闭快门 2 和打开快门 1 的时间间隔 t (甲基橙: $t = 0, 2.57, 3.87, 4.67, 8.07, 15 \text{ s}$; 乙基橙: $t = 0, 1.60, 2.34, 3.40, 5.19, 10 \text{ s}$), 测量样品在不同间隔下的衍射信号随时间变化情况。分别取信号在起始 1 秒时的衍射效率值, 然后开平方根, 这样每个间隔 t 对应一个 $\sqrt{\eta}$, 作出 $\sqrt{\eta}$ 随 t 的变化曲线, 如图 4(a) 和 (b) 所示, 此图即是甲基橙和乙基橙分子亚稳态的衰减曲线。

实验数据拟合后的曲线为:

$$\text{甲基橙分子: } \sqrt{\eta(t)} = 0.47 e^{-t/4} \propto N_1^{M_0}(t),$$

$$\text{乙基橙分子: } \sqrt{\eta(t)} = 0.63 e^{-t/2.7} \propto N_1^{E_0}(t).$$

从中得到 M0、乙基橙分子的亚稳态寿命分别为:

$$\tau^{\text{Mo}} = 4 \text{ s}, \quad \tau^{\text{Eo}} = 2.7 \text{ s}$$

利用这种方法,只要能有效排除永久光栅影响,衍射信号就能正确显示相关能级粒子数情况。当样品不形成永久光栅时,结果会更准确。另外,用这种方法原则上可测量具有双光子共振吸收特性的各种分子的相关能级寿命。

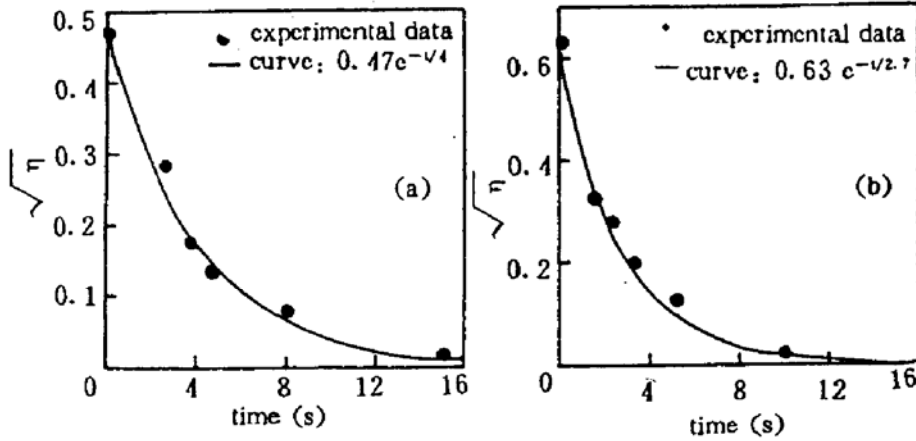


Fig. 4 The square root of efficiency as a function of delayed-time (a) MO, (b) EO

参 考 文 献

- [1] W. Demtröder, *Laser Spectroscopy*, Springer-Verlag, Berlin Heidelberg, New York, 1982: 556~561
- [2] J. L. Hall, J. L. Carlsten, *Laser Spectroscopy* (Ⅲ), Springer-Verlag, Berlin Heidelberg, New York, 1977: 459~460
- [3] H. Kogelnik, Coupled wave theory for thick hologram gratings. *Bell Syst. Tech. J.*, 1969, 48(9): 2909~2947
- [4] 武鹏飞, 硕士学位论文(吉林大学, 1993): 48~50

Metastable Life-Time Measurement of A_{20} Dye MO and EO by Biphoton Storage Method

Wu Pengfei Fei Haosheng Wei Zhengqian

(Department of Physics, Jilin University, Changchun 130023)

(Received 7 November 1993; revised 7 April 1994)

Abstract A new method for life-time measurement using two-photon storage is suggested. By delaying the time interval between shutting preexciting-beam and opening writing-beam and analysing the variation of efficiencies, we obtain the life-time of relevant energy level. The metastable life-time 4s and 2.7 s of methyl orange (MO) and ethyl orange (EO) are obtained with this method.

Key words biphoton, optical storage, energy level life-time.