

УДК 621.373:535

## ПРОСВЕТЛЕНИЕ ФУЛЛЕРЕНСОДЕРЖАЩЕЙ СРЕДЫ ПРИ ВОЗДЕЙСТВИИ ЛАЗЕРНЫХ ИМПУЛЬСОВ НАНО- И ФЕМТОСЕКУНДНОЙ ДЛИТЕЛЬНОСТИ

© 2003 г. И. М. Белоусова, доктор физ.-мат. наук; Н. Г. Миронова; М. С. Юрьев, канд. физ.-мат. наук  
НИИ лазерной физики, Санкт-Петербург

Теоретически показано, что при последовательном воздействии на фуллеренсодержащую среду лазерных импульсов нано- и фемтосекундной длительности наблюдается эффект просветления среды. Изучены зависимости этого эффекта от параметров среды и лазерного излучения. Данный эффект может служить основой для создания оптических затворов фемтосекундной длительности.

Коды OCIS: 190.0190.

Поступила в редакцию 04.09.2002.

Известно, что фуллерены и фуллеренсодержащие среды (ФС) обладают значительной оптической нелинейностью [1]. Широкое применение ФС нашли в технике нелинейного ограничения лазерного излучения [2]. В ФС ограничение лазерного излучения наблюдается в широком интервале длительностей импульса: от десятков наносекунд до сотен фемтосекунд [3–4]. В работе [4] теоретически исследованы основные закономерности нелинейного ограничения в ФС при изменении длительности импульса. В данной статье мы покажем, что в ФС может наблюдаться и другой нелинейно-оптический эффект: просветление среды под действием лазерных импульсов.

### Эффект просветления фуллеренсодержащей среды

Для реализации эффекта просветления необходимо последовательно пропустить через ФС 2 импульса – “длинный” наносекундный импульс (длительность  $t_n > t_1 = 1,5$  нс) и “короткий” фемтосекундный (длительность  $t_f < t_2 = 1$  пс) (схема уровней молекулы фуллерена  $C_{60}$  показана на рис. 1). Плотность энергии  $E_1$  “длинного” импульса и его длительность  $t_n$  должны подбираться таким образом, чтобы к концу его действия практически все молекулы фуллерена перешли в триплетное состояние  $T_1$ . В видимой области сечение поглощения с триплетного уровня  $\sigma_{ex}^T$  много больше сечения поглощения с основного состояния  $\sigma_g^S$ . Поэтому после окончания действия наносекундного импульса среда “закрыта” для слабого сигнала  $E_3$ . Это состояние сохраняется достаточно долгое время, равное времени жизни триплета  $C_{60}$  (примерно 40 мкс). Если в течение этого времени подать “короткий” фемтосекундный импульс с доста-

точной плотностью энергии  $E_2$  (интенсивность должна быть сравнимой с интенсивностью насыщения перехода 5–6), то часть молекул переходит в высоковозбужденное состояние  $T_n$ . Поэтому во время прохождения “короткого” импульса среда становится “открытой” для слабого сигнала  $E_3$ . Время жизни  $T_n$  очень мало (порядка 1 фс). Поэтому практически сразу после прохождения “короткого” импульса среда становится вновь закрытой для  $E_3$ . Таким образом, это устройство является оптическим затвором фемтосекундной длительности пропускания.

В наших расчетах длительность “длинного” импульса выбиралась  $t_n \approx 10$  нс, длительность “короткого” импульса  $t_f \approx 300$  фс. Фемтосекундный импульс подавался после прохождения наносекундного импульса. Плотности энергий этих импульсов  $E_1 \approx E_2$  лежат в интервале значений 1–10 Дж/см<sup>2</sup>, а длина волны лазерного излучения  $\lambda_1 = \lambda_2 = 532$  нм (вторая гармоника излучения неодимового лазера).

Предварительные оценки можно провести в рамках следующей простой модели. К концу “длинного” импульса молекула фуллерена может рассматриваться как квазидвухуровневая система  $T_1 \rightarrow T_n$ . Действие “длинного” импульса приводит к тому, что практически все молекулы фуллерена переходят в “триплетное” состояние, т. е.  $n_5(t=0) = 1$ , где за начальный момент  $t = 0$  выбран момент включения фемтосекундного импульса. Кинетику заселения триплетных уровней  $T_1$ ,  $T_n$  (уровни 5, 6 на рис. 1) под действием фемтосекундного импульса можно описать системой уравнений:

$$\begin{aligned} \frac{dn_5}{dt} &= -A_5 n_5 + n_6 / t_6, \\ \frac{dn_6}{dt} &= A_5 n_5 - n_6 / t_6. \end{aligned} \quad (1)$$

Здесь  $n_5, n_6$  – относительные населенности уровней  $S_5, 6, A_5 = \sigma_{ex}^T I / h\nu, \sigma_{ex}^T$  – сечение поглощения перехода  $T_1 \rightarrow T_N, I$  – интенсивность лазерного излучения,  $h\nu$  – энергия перехода,  $t_6$  – время релаксации уровня 6. Начальные условия:  $n_5(0) = 1, n_6(0) = 0$ .

Распространение излучения вдоль оси  $Z$  можно описать уравнением:

$$\frac{1}{c} \frac{\partial I}{\partial t} + \frac{\partial I}{\partial z} = -\sigma_{ex}^T N_F n_5(t), \quad (2)$$

где  $N_F$  – концентрация фуллера.

Рассмотрим тонкий слой среды, т. е. слой, в котором первым членом в левой части уравнения (2) можно пренебречь. Считаем, что длительность фронта фемтосекундного импульса много меньше длительности самого импульса, т. е. импульс практически прямоугольный. Из (1) и (2) получим:

$$\int_x^1 \frac{(1+by)dy}{y[1+b \exp-(1+b)\tau]} = \sigma_{ex}^T N_F L. \quad (3)$$

Здесь  $x = I_{out}/I_0$ , где  $I_{out}$  – выходная интенсивность,  $I_0$  – входная интенсивность,  $\tau = t/t_6, b = I_0/I_s, I_s = h\nu/(\sigma_{ex}^T t_6)$  – интенсивность насыщения перехода  $T_1 \rightarrow T_N, L$  – длина среды. Равенство (3) является уравнением относительно  $x$  и решение этого уравнения определяет пропускание излучения. В рассматриваемом приближении выполняется известный закон подобия по произведению молярной концентрации  $C$  фуллера на длину среды  $L$  [1]. Проведенный расчет по формуле (3) для значений  $L = 50$  мкм,  $C = 30$  мМ показал, что прямоугольный импульс излучения приобретает передний фронт с длительностью порядка 2 фс (см. рис. 2). Для усредненной по времени выходной плотности энергии получим следующее уравнение:

$$\beta(E_0 - E_f) + \ln \frac{E_0}{E_f} = \alpha L, \quad (4)$$

где  $E_f, E_0$  – плотности выходной и входной энергий соответственно,  $\beta = \sigma_{ex}^T t_6 / (h\nu t_f), \alpha = \sigma_{ex}^T N_F$ .

Количественной характеристикой эффекта может служить контраст пропускания среды для непрерывного слабого сигнала  $E_3$ : отношение выходной мощности слабого сигнала в режиме просветления к его выходной мощности в отсутствие короткого импульса. По формуле (4) проведен расчет зависимости контраста, усредненного по времени, от плотности падающей энергии фемтосекундного импульса. Результаты расчета представлены на рис. 3. Видно, что энергетический порог просветления примерно 1 Дж/см<sup>2</sup>. Для плотностей энергии, заметно превосходящих порог (5–10 Дж/см<sup>2</sup>), в присутствии короткого импульса проходит примерно половина мощности слабого сигнала, в его отсутствие – приблизительно 14%.

После выключения фемтосекундного импульса система релаксирует к метастабильному состоянию.

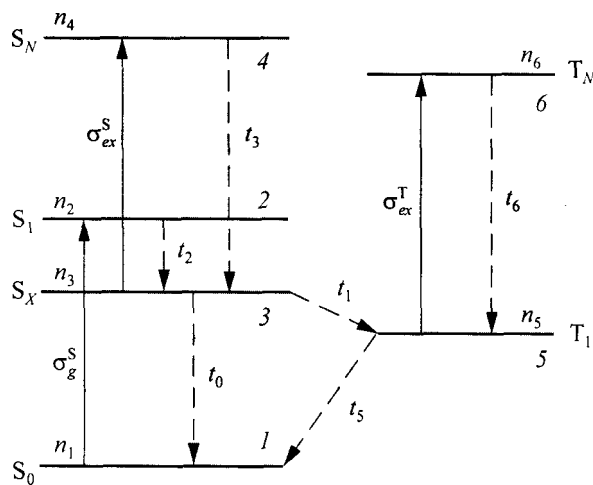


Рис. 1. Схема основных энергетических уровней молекулы фуллера.  $\sigma_g^S, \sigma_{ex}^S, \sigma_{ex}^T$  – значения сечений поглощения, где  $g$  обозначает основное состояние,  $ex$  – возбужденное состояние и  $S, T$  – соответственно синглетное и триплетное состояния.  $t_0, t_2, t_3, t_5, t_6$  – времена жизни,  $t_1$  – время интерконверсии,  $n_i$  – относительные заселенности уровней ( $n_i = N_i/N_F$ , где  $N_i$  – абсолютная заселенность  $i$ -го уровня,  $N_F$  – концентрация молекул фуллера в растворе). Сплошные стрелки обозначают излучательные переходы, пунктирные линии – безызлучательные.

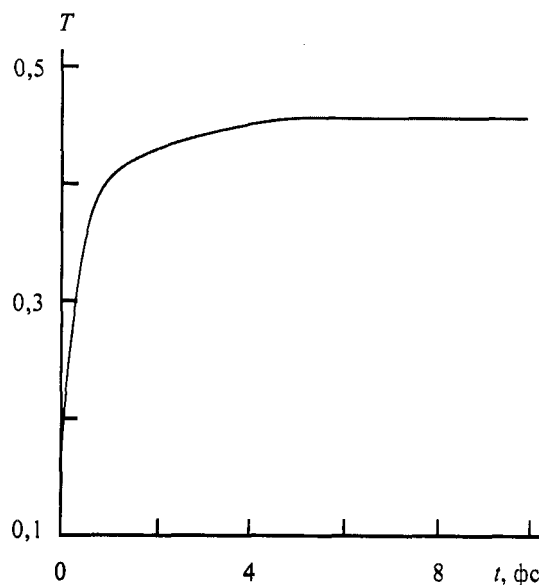


Рис. 2. Аналитическая зависимость просветления среды (пропускания  $T$  слабого сигнала) от времени при  $LC = 1,5 \times 10^{-6}$  м М,  $t_n = 10$  нс,  $t_f = 300$  фс,  $E_2 = 10$  Дж/см<sup>2</sup>.

Зависимость пропускания от времени описывается следующей формулой:

$$x(t) = \exp(-\sigma_{ex}^T N_F L (1 - \exp(-t/t_6))). \quad (5)$$

В формуле (5) за начало отсчета времени принят момент выключения излучения. Скорость релаксации системы определяется временем  $t_6 \approx 1$  фс. Изучая задний фронт импульса, можно определить вре-

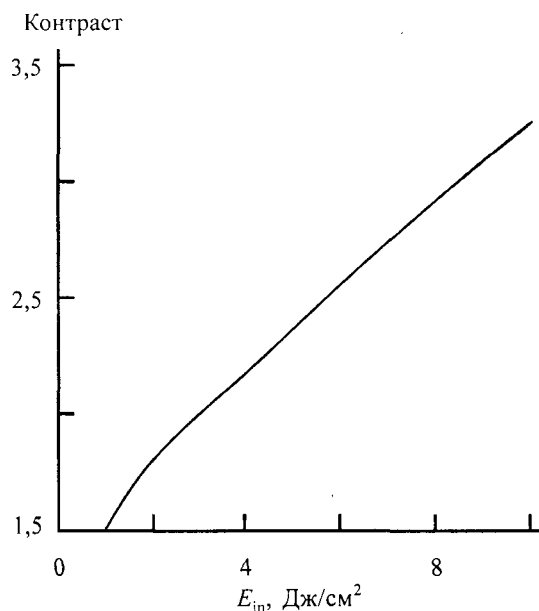


Рис. 3. Аналитическая зависимость усредненного контраста от входной плотности энергии фемтосекундного импульса при  $LC = 1,5 \times 10^{-6}$  м М,  $t_n = 10$  нс,  $t_f = 300$  фс.

мя релаксации  $t_6$ . Это представляет интерес, так как данные об этой константе весьма неточны.

### Численный расчет

Нами было проведено также численное моделирование рассматриваемого эффекта. Численный расчет проводился в рамках обычной для таких задач шестиуровневой модели (см., например, [2]) кинетики заселения уровней фуллерена  $C_{60}$ . Кинетические уравнения решались совместно с уравнением переноса излучения (2). Такой подход позволяет выйти за рамки приближения тонкой среды, сделанного при выводе аналитических формул предыдущего раздела. В качестве растворителя мы выбирали 1,2-ди-хлорбензол, поскольку растворимость фуллерена в 1,2-ди-хлорбензоле выше, чем в других растворителях, и это позволяет нам использовать в расчете достаточно большие значения концентрации  $C_{60}$  (до 30 мМ), чтобы обеспечить высокий контраст. Проведен расчет зависимости контраста от длины среды. Концентрация подбиралась так, чтобы произведение длины кюветы на молярную концентрацию было постоянным и равным  $LC = 1,5 \times 10^{-6}$  м М. На рис. 4 показана зависимость контраста от длины среды. Видно, что с увеличением длины среды контраст падает. Расчет показал, что по мере прохождения толстой среды фемтосекундный импульс приобретает все более пологий передний фронт и интенсивность на фронте недостаточно велика для эффективного просветления среды. Поэтому эффективное просветление может быть организовано только для достаточно тонких сред.

Таким образом, показано, что при последовательном облучении ФС лазерными импульсами нано- и

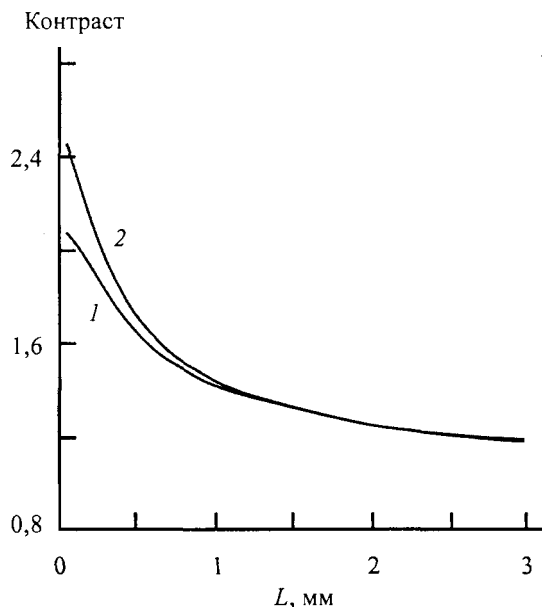


Рис. 4. Результаты численного моделирования. Зависимость контраста от длины кюветы ( $E_2 = 10$  Дж/см<sup>2</sup>): 1 – импульс накачки и просветляющий импульс имеют форму Гаусса и длительности по полуширине 10 нс и 250 фс соответственно, 2 – импульс накачки и просветляющий импульс имеют прямоугольную форму и длительности 10 нс и 250 фс соответственно.

фемтосекундной длительности среда просветляется на время действия короткого импульса. Выявлены оптимальные условия проявления этого эффекта.

Авторы приносят благодарность Л.Н. Сомсу за полезное обсуждение работы. Работа выполнена при поддержке Международного научно-технического центра (грант № 1454).

### ЛИТЕРАТУРА

1. Белоусов В.П., Белоусова И.М., Будтов В.П., Данилов В.В., Данилов О.Б., Калинин А.Г., Мак А.А. Фуллерены: структурные, физико-химические и нелинейно-оптические свойства // Оптический журнал. 1997. Т. 64, № 12. С. 3–37.
2. Белоусов В.П., Белоусова И.М., Гавронская Е.А., Григорьев В.А., Данилов О.Б., Калинин А.Г., Краснополянский В.Е., Смирнов В.А., Соснов Е.Н. О механизме оптического ограничения лазерного излучения фуллереносодержащими средами // Опт. и спектр. 1999. Т. 87, № 5. С. 845–852.
3. Couris S., Koudoumas E., Tzortzakis S. and Leach S. Transient population and electronic polarization nonlinear optical responses of fullerenes in solution // Electrochemical Society Proc. 1996. V. 97–42. P. 225–237.
4. Белоусова И.М., Миронова Н.Г., Юрьев М.С. Теоретическое исследование зависимости ослабления импульсного лазерного излучения фуллереносодержащими растворами от длительности импульса // Опт. и спектр. 2001. Т. 91. № 5. С. 880–885.