

University of Groningen

Nonlinear optical investigations of vibrational dynamics in solids

Duppen, Koos

IMPORTANT NOTE: You are advised to consult the publisher's version (publisher's PDF) if you wish to cite from it. Please check the document version below.

Document Version

Publisher's PDF, also known as Version of record

Publication date:

1985

[Link to publication in University of Groningen/UMCG research database](#)

Citation for published version (APA):

Duppen, K. (1985). Nonlinear optical investigations of vibrational dynamics in solids s.n.

Copyright

Other than for strictly personal use, it is not permitted to download or to forward/distribute the text or part of it without the consent of the author(s) and/or copyright holder(s), unless the work is under an open content license (like Creative Commons).

Take-down policy

If you believe that this document breaches copyright please contact us providing details, and we will remove access to the work immediately and investigate your claim.

Downloaded from the University of Groningen/UMCG research database (Pure): <http://www.rug.nl/research/portal>. For technical reasons the number of authors shown on this cover page is limited to 10 maximum.

SAMENVATTING

Aangezien vibratiedynamika in vaste stof systemen plaatsvindt op een bijzonder korte tijdschaal, dient een onderzoek naar de processen die hierbij een rol spelen gebruik te maken van ultrasnelle meetmethoden. In dit proefschrift worden spektroskopische experimenten beschreven die gebaseerd zijn op de niet-lineaire respons van een materiaal op een aantal zeer korte lichtflitsen. Deze pulsen, die gelijktijdig op twee verschillende lichtfrequenties gegenereerd worden in een tandem, synchroon-gepompt kleurstoflaser systeem dat uitgerust is met optische versterkers, hebben een tijdsduur van ongeveer vijf picosekonden (1 picoseconde = 0,00000000001 sekonde). Door het grote tijdsoplossende vermogen van deze opstelling is het mogelijk vibratie populatie relaxatie en vibratie defasering in vele vaste stof systemen experimenteel te volgen.

Het modelsysteem waarvan verschillende dynamische aspecten van vibratietoestanden bestudeerd zijn, is pentaceen dat in zeer lage concentratie (10 ppm) aanwezig is in één-kristallen van naftaleen of benzoëzuur. In deze omstandigheden gedragen de pentaceen molekulen zich onafhankelijk van elkaar zodat de eigenschappen van de ca. 10^{10} pentaceen molekulen, waaraan gemeten wordt, beschreven kunnen worden als een statistische sommatie van de eigenschappen van de individuele molekulen. Bij de optische experimenten dient gebruik te worden gemaakt van meervoudige resonanties van pentaceen, zowel op de laserfrequenties zelf als op verschilfrequenties, aangezien anders de niet-resonante respons van de grote overmaat aan één-kristal molekulen de niet-lineaire optische signalen van pentaceen zou overheersen.

De belangrijkste experimentele technieken die aan de orde komen zijn: tijdsopgeloste coherente Raman verstrooiing, twee-kleuren gestimuleerde foton echo's, en licht verstrooiing t.g.v. ruimtelijk gemoduleerde vibratie populaties. Gezamenlijk geven deze methoden een beeld van vibratie populatie-relaxatie en defasering in de elektronische grond- en aangeslagen toestand van pentaceen. Het blijkt dat de defasering totaal niet gevoelig is voor laag-frequente roostertrillingen die wel de optische lijnbreedte sterk beïnvloeden. Uit de dynamika van de populaties volgt niet alleen dat de initiële relaxatie snelheid vrij groot is, maar ook dat de vibratie energie in enkele tientallen picosekonden volledig gedissipeerd is.

In hoofdstuk I wordt een korte inleiding gegeven in de achtergronden van het onderzoek. Daarnaast komt de indeling van het proefschrift aan de orde.

In hoofdstuk II wordt het algemene, semi-klassieke formalisme van de niet-lineaire spektroskopie behandeld. Een samenhang tussen lichtverstrooiing t.g.v. ruimtelijke modulaties (holografie) en frequentie modulaties (gestimuleerde echo's) wordt aangegeven en frequentie-domein coherente Raman verstrooiing wordt besproken.

De opstelling die gebruikt wordt voor de produktie en versterking van picoseconde pulsen wordt in hoofdstuk III beschreven. Ook wordt een kort overzicht gegeven van de experimenten die in de volgende hoofdstukken aan de orde komen.

In hoofdstuk IV wordt de theorie voor de interactie van picoseconde pulsen op twee frequenties met een vier-nivo systeem behandeld. Experimentele resultaten worden gepresenteerd die aantonen dat een storingsreeks behandeling in meervoudig resonanté omstandigheden niet juist is. Ook wordt gewezen op een fundamenteel verschil tussen aangeslagen toestand resonanties in frequentie- en tijdsdomein experimenten. In het volgende hoofdstuk wordt op dit punt nogmaals teruggekomen.

De vibratie defasering van pentaceen in de elektronische grond- of aangeslagen toestand wordt m.b.v. CARS en CSRS bestudeerd in hoofdstuk V. De verschillen met elektronische defasering worden benadrukt. Inhomogene verbreding van de vibratie overgangen blijkt verwaarloosbaar te zijn. Interferenties worden waargenomen tussen optische signalen van pentaceen en naftaleen.

Hoofdstuk VI bevat een beschrijving van een aantal twee-kleuren foton echo's in drie- en vier-nivo systemen. Deze echo's zijn nauw gerelateerd aan de coherente Raman experimenten van hoofdstukken IV en V. M.b.v. deze echo's wordt vibratie populatie relaxatie in de aangeslagen elektronische toestand bestudeerd.

Tenslotte, in hoofdstuk VII, worden experimenten beschreven waarin gebruik wordt gemaakt van ruimtelijk gemoduleerde Raman overgangswaarschijnlijkheden. Hiermee kan vibratie populatie relaxatie in de elektronische grondtoestand bestudeerd worden.