

Žadinimo-zondavimo spektrų modeliavimas prie didelių žadinimo intensyvumų J agregatuose

Modeling of pump-probe spectra at high excitation intensities for J aggregates

Vytautas Bubilaitis, Darius Abramavičius
Cheminės fizikos institutas, Saulėtekio al. 3, LT-10257 Vilnius
vytautas.bubilaitis@ff.vu.lt

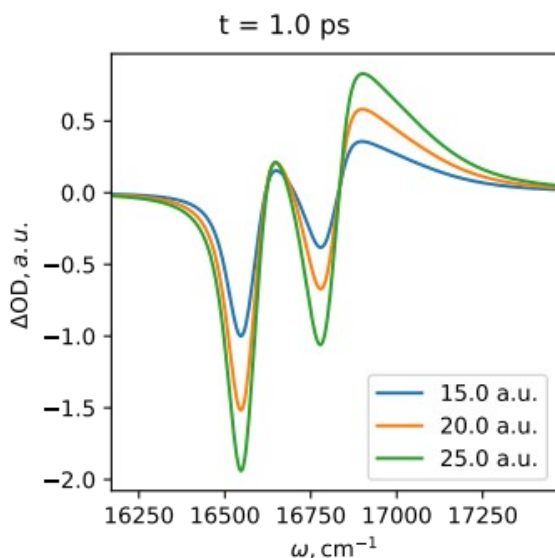
Eksitono-eksitono anihiliacija (EEA) yra procesas, kurio metu iš dviejų molekulių sužadintų tdivigubai sužadinta būseną. Tada labai greitai įvyksta vidinė konversija ir lieka tik 1 sužadintimas.

EEA yra stebima dvisieniuose dažų molekulių nanovamzdeliuose [1]. EEA poveikį galima pamatyti žadinimo-zondavimo spektruose [2].

Mūsų tikslas yra teoriškai aprašyti žadinimo-zondavimo spektrus šiuose agregatuose. Tam mes pasitelkiame jau mūsų išvestas netiesines eksitonų lygtis (NEE) [2] su papildomais aukštesnės eilės nariais, aprašančiais EEA procesą. Bendradarbiaujama su prof. J. Hauer, kurio grupėje šie spektrai buvo išmatuoti.

Dvisieniai nanovamzdeliai yra didelės sistemos sudarytos iš tūkstančių molekulių. Todėl norint suskaičiuoti žadinimo-zondavimo spektrus su NEE lygtimis turime atlikti keletą aproksimacijų. Laikome du vamzdelius nepriklausomais, vamzdelius ištiesiname, tai yra sukonstruojama J agregatą, nes mus domina tik mažiausios energijos spektrinė linija.

Dalis skaičiavimo rezultatų yra pateikta 1 ir 2 pav. Šiuose paveiksluose yra pateikti žadinimo-zondavimo spektrai kai yra skirtingi žadinimo intensyvumai. 1 pav. spektrai yra kaip vėlinimo trukmė 1 ps, o 2 pav. - 10 ps.

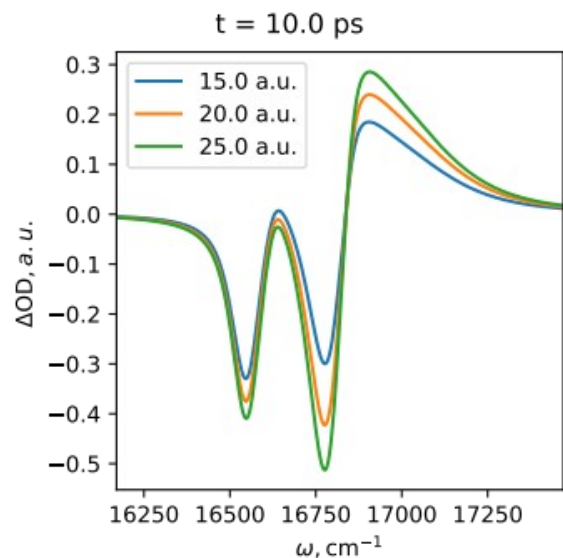


1 pav. Suskaičiuoti žadinimo-zondavimo spektrai su 1 ps vėlinimo trukme esant skirtingiems žadinimo intensyvumams

Kiekviena neigiama smailė atitinka vieną vamzdelį, kairė yra vidinis vamzdelis, dešinėje išorinis [1]. Neigiama smailė yra išblyškimo ir stimuliuotos emisijos suma, o teigiama dalis - stimuliuotos emisijos. Vidinio vamzdelio stimuliuota emisija persidengia su išorinio vamzdelio neigiama dalimi.

Išorinio vamzdelio spektrinės linijos gęsta greičiau, todėl manome EEA šiame vamzdelyje vyksta sparčiau, todėl šiam vamzdeliui yra parinkta didesnė anihiliacijos parametro vertė, bet gali būti šis efektas yra dėl galimos sužadintų pernašos tarp vamzdelių, kurios mes neįskaitome.

Taip pat matyti spektrinių linijų gesimo priklausomybę nuo žadinimo intensyvumo. Išorinio vamzdelio spektrinės linijos labiau priklauso nuo žadinimo intensyvumo esant ilgesniam vėlinimo laikui.



2 pav. Suskaičiuoti žadinimo-zondavimo spektrai su 10 ps vėlinimo trukme esant skirtingiems žadinimo intensyvumams

Reikšminiai žodžiai: žadinimo zondavimo spektrai, molekuliniai agregatai, eksitono-eksitono anihiliacija.

Literatūra

- [1] Kriete, B., Lüttig, J., Kunsel, T. *et al.* Interplay between structural hierarchy and exciton diffusion in artificial light harvesting. *Nat Commun* **10**, 4615 (2019)
- [2] V. Bubilaitis, J. Hauer and D. Abramavičius, *Chem. Phys.* **527**, 110458 (2019).