



Universiteit
Leiden
The Netherlands

Stable single molecules for quantum optics and all-optical switches

Navarro Perez, P.

Citation

Navarro Perez, P. (2014, November 13). *Stable single molecules for quantum optics and all-optical switches*. *Casimir PhD Series*. Retrieved from <https://hdl.handle.net/1887/29975>

Version: Not Applicable (or Unknown)

License: [Leiden University Non-exclusive license](#)

Downloaded from: <https://hdl.handle.net/1887/29975>

Note: To cite this publication please use the final published version (if applicable).

Cover Page



Universiteit Leiden



The handle <http://hdl.handle.net/1887/29975> holds various files of this Leiden University dissertation.

Author: Navarro Pérez, Pedro

Title: Stable single molecules for quantum optics and all-optical switches

Issue Date: 2014-11-13

Samenvatting

Spectroscopie en microscopie aan individuele moleculen bij kamertemperatuur is voornamelijk gebaseerd op het verdunnen van een kleurstof in een oplosmiddel of vaste stof totdat er nog maar één molecuul over is in een volume ter grootte van de optische diffractielimiet. Bij kamertemperatuur is de absorptiedoorsnede van het molecuul klein omdat de spectrale lijnen breed zijn vanwege elektron decoherentie. Echter, wanneer men het molecuul oplost in een vaste matrix waarmee de wisselwerking klein is (zoals we hebben gedaan in de experimenten die in dit proefschrift worden besproken), leidt de onderdrukking van decoherentieprocessen tot een versmalling van de lijn (tot aan de levensduur ofwel Fourier gelimiteerde lijnbreedte) en tot een vergroting van de absorptiedoorsnede. Tenslotte, doordat de optische overgang binnen een molecuul optreedt tussen twee zuivere elektronische toestanden, en zonder de creatie of annihilatie van fononen (de zogeheten nul-fononlijn), kan het individuele molecuul beschouwd worden als een kwantum twee-niveausysteem.

In een deel van dit proefschrift beschrijven wij de spectroscopische eigenschappen (de verdeling van lijnbreedtes, de stabiliteit van de resonantiefrequentie, het verzadigingsprofiel) van individuele dibenzoterryleen (DBT, hoofdstuk 2), terryleen (hoofdstuk 3) en peryleen (hoofdstuk 6) moleculen, ingebed in verschillende vaste stoffen om zo nieuwe combinaties van gast en gastheer te karakteriseren als systemen voor spectroscopie aan individuele moleculen. Door te kijken naar de verdeling van lijnbreedtes van geselecteerde moleculen bij een intensiteit van nul kunnen we de experimentele observaties correleren aan fysische fenomenen die plaatsvinden in de directe omgeving van het kleurstofmolecuul.

Door de lichtintensiteit van een individueel molecuul te volgen in de tijd en te kijken naar de corresponderende autocorrelatie functie, waren we in staat dynamische processen in de omgeving van het kleurstofmolecuul op verschillende tijdschalen te bestuderen. Deze experimenten bespreken we in de hoofdstukken 2 en 5.

Daarnaast gebruiken we in hoofdstuk 5 de levensduur gelimiteerde lijnbreedte van DBT in een anthraceen kristal om de effecten waar te nemen van een externe storing. Daarbij

functioneert de resonante excitatielijns als een ultra-gevoelige sensor om kleine oscillaties van een elektrisch aangedreven stemvork van kwarts te detecteren. Bovendien kunnen de stabiele moleculen die worden beschreven in dit proefschrift mogelijk gebruikt worden als bron van individuele fotonen, als optische transistor, als volledig optische schakelaar gebaseerd op niet-lineaire optische fenomenen en voor het volledig optisch uitlezen van de kwantumtoestand van een nanoscopische mechanische oscillator.

Ter voorbereiding van een voorgesteld experiment met een twee-kleuren optische transistor, is het nodig om het energieverschil tussen de singlet grondtoestand en de triplet aangeslagen toestand te bepalen. Voor peryleen in anthraceen is bekend dat de corresponderende overgang bij 778 nm ligt. Echter voor teryleen kon deze overgang niet waargenomen worden vanwege de lage waarschijnlijkheid van “intersystem crossing” voor dit molecuul. We hebben daarom, als beschreven in hoofdstuk 4, getracht om de singlet-triplet overgang te induceren met behulp van een bundel elektronen. Daarnaast hebben we andere technieken gebruikt voor de bepaling van vibrationele en elektronische eigenschappen van teryleen. Ondanks alle inspanningen weten we de energie van de laagste triplettoestand van teryleen nog steeds niet.