

超高斯脉冲反饱和吸收效应响应特性理论模拟

程 坤 赵军普 胡东霞 代万俊 袁 强 周 维 张 鑫 邓 武 蒋学君
张 崑 张小民 景 峰

(中国工程物理研究院激光聚变研究中心, 四川 绵阳 621900)

摘要 基于非线性传输方程与五能级速率方程的耦合模型分析了超高斯脉冲在反饱和吸收(RSA)作用下的动态响应特性。研究了脉冲时空波形在 RSA 材料中的演化规律以及脉冲与材料相互作用的动力学过程。讨论了单重态第一激发态寿命对输出脉冲时空波形的影响,并优化了材料参数以避免时空畸变。对新型 RSA 材料的开发以及在时空波形敏感领域的应用具有指导意义。

关键词 非线性光学;反饱和吸收;动态响应;时空畸变

中图分类号 O437 文献标识码 A doi: 10.3788/CJL201239.0202002

Dynamic Response Characteristics of Super-Gaussian Pulse to Reverse Saturable Absorption Effect

Cheng Kun Zhao Junpu Hu Dongxia Dai Wanjun Yuan Qiang Zhou Wei Zhang Xin
Deng Wu Jiang Xuejun Zhang Kun Zhang Xiaomin Jing Feng

(Laser Fusion Research Center, China Academy of Engineering Physics, Mianyang, Sichuan 621900, China)

Abstract The dynamic response characteristics of super-Gaussian pulse to reverse saturable absorption (RSA) effect are studied theoretically based on a couple model of nonlinear propagation and rate equations. The spatiotemporal evolution of laser intensity in RSA material and the dynamics of the interplay between the pulse and the carrier are investigated. Effects of the variation of excited-state lifetime are discussed and material parameters are optimized to avoid spatiotemporal distortion. The calculation supports guidelines for design of new RSA materials in spatiotemporal shape sensitive applications.

Key words nonlinear optics; reverse saturable absorption; dynamic response; spatiotemporal distortion

OCIS codes 190.4710; 190.5530; 140.3300; 140.3360

1 引 言

光限幅效应(OLE)是一种非线性光学效应,在低光强(能量)激发下,介质具有较高的线性透射率,随着输入光强(能量)增大,输出光强(能量)近似线性增加,当光强(能量)达到一定阈值后,介质具有较低的非线性透射率,随输入光强增加,输出光强被限制在一定范围内^[1]。光限幅器常被用于保护眼睛或光敏元件免受激光损伤。金属酞菁^[2,3]、金属卟啉^[4]、三苯胺衍生物^[5]、偶氮苯^[6]、CTNi^[7]等多种材

料具有光限幅特性。以往对光限幅材料的评价集中于良好的能量透射率曲线、快速响应、较快的光谱和时间动态范围等性能^[4]。

发展至今,限幅器的应用已扩展至脉冲整形、光通信、激光聚变等领域。在这些领域的应用中,输出脉冲时空波形的畸变是极为不利的,从而光限幅材料性能的评价又增加了输出脉冲时空分布这一新指标。Gao 等^[8]研究了双光子吸收材料中激发态吸收对高斯脉冲时空波形的影响。Khoo 等^[9]研究了基

收稿日期: 2011-09-23; 收到修改稿日期: 2011-10-21

基金项目: 国家自然科学基金(11074225)和中国工程物理研究院科学技术发展基金(2009B0401045)资助课题。

作者简介: 程 坤(1984—),男,博士研究生,主要从事强激光非线性传输方面的研究。E-mail: kchengx@163.com

导师简介: 景 峰(1968—),男,博士,研究员,主要从事高功率固体激光物理和激光技术等方面的研究。

E-mail: jingfeng@my-public.sc.cninfo.net(通信联系人)

态、激发态粒子饱和效应以及多光子吸收的光强依赖性对脉冲激光在多光子吸收材料中非线性透射率的影响。反饱和吸收(RSA)材料适用于较宽的脉宽与光谱范围,具有极好的化学、热稳定性^[10],是理想的宽带限幅材料;此外,超高斯脉冲在激光聚变领域有着重要应用。基于以上考虑,本文理论分析了超高斯脉冲经过 RSA 材料后输出脉冲的时空特性及材料与激光作用的动力学过程,研究了材料第一激发态寿命对输出脉冲时空特性的影响。

2 理论描述

强度传输方程与速率方程耦合是研究 RSA 材料中的非线性效应的传统方法,存在衍射、色散以及自聚焦的情况下,传统的强度传输方程难以细致地描述光限幅过程,本文采用电场传输方程。电场传输方程与速率方程的耦合理论,能够描述包括载流子密度的动力学过程以及非线性克尔效应引起的吸收增强。结合材料参数,比如吸收截面、衰退速率,可以预言非线性吸收。能够研究脉冲特性,包括脉冲时间宽度、空间尺寸、入射能量,与载流子动力学 RSA 体的相互作用。

在单色光近似下,将快变部分分离,光场和电极化强度可表示为^[11]

$$\begin{cases} E(r, z, t) = \frac{1}{2}A(r, z, t) \exp(ik_0 z - i\omega_0 t) + c. c. \\ P(r, z, t) = \frac{1}{2}P(r, z, t) \exp(ik_0 z - i\omega_0 t) + c. c. \end{cases}, \quad (1)$$

式中 A, P 分别为光场和非线性电极化强度的复振幅。 k_0 和 ω_0 分别为入射光场的波数和频率。忽略高阶色散,电场在非线性介质中传输可用非线性薛定谔方程描述^[12]

$$\left(k_1 \frac{\partial}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial z}\right)A = \frac{i}{2k_0} \nabla_r^2 A - \frac{i}{2} k_2 \frac{\partial^2}{\partial t^2} A + i \left[\frac{n_2 \omega_0}{c} |A|^2 \right] A - \frac{i\omega_0}{2cn_0 \epsilon_0} P_{NL}, \quad (2)$$

式中 P_{NL} 为 RSA 引起的非线性电极化强度, $k_n = \frac{\partial^n k}{\partial \omega^n} \Big|_{\omega_0}$, n_2 为非线性折射率系数。为体现材料微观特性对非线性吸收的贡献,光场与物质的相互作用由半经典理论描述,即光场是经典的,物质是量子化的。利用密度矩阵,极化强度矢量表示为^[13]

$$\mathbf{P} = e \int \varphi \varphi^* \mathbf{r} dx = \sum_{nm} \rho_{nm} \boldsymbol{\mu}_{nm} = \text{Tr}(\boldsymbol{\rho} \boldsymbol{\mu}). \quad (3)$$

系统哈密顿量 \mathbf{H} 包含两部分:未微扰哈密顿算

符 \mathbf{H}_0 , 相互作用哈密顿算符 \mathbf{H}_1 。在电偶极近似下, $\mathbf{H}_1 = -e\mathbf{r} \cdot \mathbf{E} = -\boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{E}$, 假定光场在 x 方向偏振, $\mathbf{H}_1 = -\boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{E} = -\mu_x E_x = -\boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{E}$ 。 n 能级的本征态和本征值分别为 $|n\rangle, \epsilon_n = \hbar\omega_n$ 。系统波函数和哈密顿算符可以表示为 $|\varphi\rangle = \sum_n c_n |n\rangle, \mathbf{H}_0 |n\rangle = \epsilon_n |n\rangle$ 。密度矩阵算符定义为 $\rho = |\varphi\rangle\langle\varphi|$, 其运动方程为

$$\dot{\boldsymbol{\rho}} = -\frac{i}{\hbar} [\mathbf{H}, \boldsymbol{\rho}]. \quad (4)$$

将运动方程写成矩阵元形式并唯象的引入弛豫项^[14]:

$$\dot{\rho}_{nm} = -\gamma_n \rho_{nm} - \frac{iE}{\hbar} \sum_{m \neq n} \{ \mu_{mn} \rho_{nm} - \mu_{nm} \rho_{mn} \}, \quad (5)$$

$$\dot{\rho}_{nm} = -(\gamma_{\perp} + i\omega_{nm}) \rho_{nm} - \frac{iE}{\hbar} \mu_{nm} (\rho_{nm} - \rho_{mn}), \quad (6)$$

式中 γ_n 为 n 能级粒子数的衰减速率, $\gamma_{\perp} = \gamma_{nm} + \gamma_{ph}$ 为电偶极矩衰减速率, μ_{nm} 为电偶极矩矩阵元, $\omega_{nm} = \omega_n - \omega_m$ 为原子跃迁的角频率。假设 $E(t)$ 以及 $|n\rangle$ 态的粒子数 ρ_{nm} 为时间的慢变项^[15], 求解(4)式并做旋转波近似:

$$\rho_{nm} = \frac{i\mu_{nm} E(t)}{2\hbar} \frac{\rho_{nm} - \rho_{mn}}{i(\omega_{nm} - \omega_0) + \gamma_{\perp}} \exp(-i\omega_0 t). \quad (7)$$

将(7)式代入(5)式,密度矩阵对角元可写为

$$\frac{\partial \rho_{mm}}{\partial t} = -\gamma_n \rho_{mm} + \sum_{n \neq m} \sigma_{nm} \phi (\rho_{nm} - \rho_{mn}), \quad (8)$$

式中 $\sigma_{nm} = \omega_0 \gamma_{\perp} \mu_{nm}^2 / \{ \hbar n c \epsilon_0 [(\omega_{nm} - \omega_0)^2 + \gamma_{\perp}^2] \}$ 为 $|n\rangle$ 态到 $|m\rangle$ 态的吸收截面, $\phi = I / \hbar\omega_0 = cn\epsilon_0 |E(t)|^2 / (2\hbar\omega_0)$ 为光子流量。

(8)式中角标 m 的取值取决于具体的能级结构和跃迁选择定则。图 1 为描述发色团能级结构的五能级模型^[16], 三个单重态能级与两个三重态能级耦合。图中 S_0 为基态, S_1, S_2 分别为单重态第一、第二激发态, T_1, T_2 为三重态第一、第二激发态, N_n 为 n 能级的电子数, σ_{nm} 为 n 能级到 m 能级的吸收截面, k_{nm} 为 n 能级到 m 能级的衰退速率。令 $N_n = \rho_{nn}$ 为 n

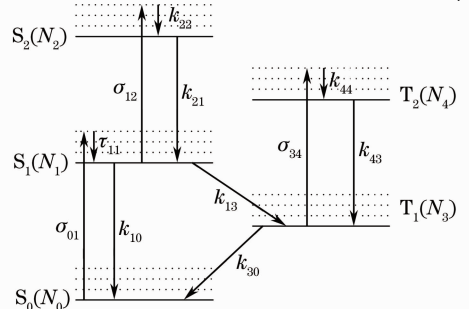


图 1 RSA 体的五能级模型

Fig. 1 Schematic energy level diagram of RSA material

能级粒子数, 利用(8)式得到与图 1 相应的速率方程为

$$\begin{cases} \frac{\partial N_0}{\partial t} = -\sigma_{01}\phi N_0 + k_{10}N_1 + k_{30}N_3 \\ \frac{\partial N_1}{\partial t} = \sigma_{01}\phi N_0 - (\sigma_{12}\phi + k_{13} + k_{10})N_1 + k_{21}N_2 \\ \frac{\partial N_2}{\partial t} = \sigma_{12}\phi N_1 - k_{21}N_2 \\ \frac{\partial N_3}{\partial t} = -(\sigma_{34}\phi + k_{30})N_3 + k_{43}N_4 \\ \frac{\partial N_4}{\partial t} = \sigma_{34}\phi N_3 - k_{43}N_4 \end{cases} \quad (9)$$

由(3)式和(7)式可以得到

$$P_{NL} = -\frac{inc\epsilon_0}{\omega_0}[\sigma_{01}N_0 + \sigma_{12}N_2 + \sigma_{34}N_3]A. \quad (10)$$

鉴于超高斯光束在聚变驱动器中应用的普遍性, 假设入射脉冲为

$$A(r, t, z=0) = A_0 \exp\left(\frac{-r^8}{2a_0^8}\right) \exp\left(\frac{-t^8}{2T_0^8}\right), \quad (11)$$

式中 a_0 为光束束腰半径, T_0 为 $1/e$ 强度的半峰全宽, A_0 为入射脉冲幅值, A_0^2 表示入射脉冲峰值光强。传输方程做移动坐标变换并归一化处理:

$$Q = \frac{A}{A_0}, \quad \rho = \frac{r}{a_0}, \quad \xi = \frac{z}{k_0 a_0^2/2}, \quad \tau = \frac{t - k_1 z}{T_0}. \quad (12)$$

利用(12)式, 结合(10)式, 传输方程变为

$$\begin{aligned} \frac{\partial Q}{\partial \xi} &= \frac{i}{4} \nabla_\rho^2 Q - i \frac{1}{2} \cdot \gamma \frac{\partial^2 Q}{\partial \tau^2} + iap |Q|^2 Q - \\ &\delta[\sigma_{01}N_0 + \sigma_{12}N_1 + \sigma_{34}N_3]Q, \end{aligned} \quad (13)$$

式中 $ap = (n_2 \omega_0 A_0^2/c)k_0 a_0^2/2$, $\gamma = k_0 k_2 a_0^2/(2T_0^2)$, $\delta = k_0 a_0^2/4$ 。(9)式和(13)式即为描述 RSA 效应的耦合方程。

3 结果与讨论

在计算过程中未考虑自聚焦和色散的影响, 计算参数见表 1^[16], 计算过程中的所有入射脉冲波形如图 2 所示。

3.1 输出脉冲波形的特征

图 3 为不同传播距离 ($z = 0.3, 0.6, 0.9, 1.2$ cm) 处的时空分布。从图中可看出, 随着脉冲传输距离的增长, 脉冲时间轮廓后延变缓、峰值前移, 畸变明显; 脉冲空间轮廓发生改变, 脉冲能量不断减少。在对脉冲波形要求严格的情况下脉冲波形畸变是有害的, 为避免空间畸变传输距离应小于

表 1 文中计算参数

Table 1 Material parameters used for simulation

Parameter	Value
λ /nm	532
a_0 / μ m	45
T_0 /ps	40
N_T / cm^{-3}	6.022×10^{17}
σ_{01} / cm^2	2.4×10^{-18}
σ_{12} / cm^2	3.0×10^{-17}
σ_{34} / cm^2	4.8×10^{-17}
k_{10} / ns^{-1}	0.144
k_{21} / ps^{-1}	1.0
k_{13} / μs^{-1}	77.8
k_{30} / ms^{-1}	50.0
k_{43} / ps^{-1}	1.0

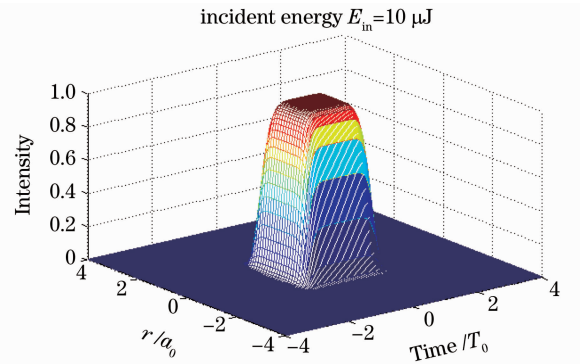


图 2 入射脉冲时空分布

Fig. 2 Spatiotemporal shape of incident pulse

0.3 cm。图 4 为材料长度小于 0.3 cm 时脉冲的空间与时间分布。图 4(a)表明, 传输 2 mm 时脉冲空间分布已发生畸变, 因此将传输距离限制在 2 mm 以下可避免明显的空间畸变; 图 4(b)表明控制传输距离同样有助于降低时间畸变。

3.2 脉冲时空分布与粒子数密度的关系

为了描述脉冲演变的动力学过程, 图 5 给出了图 3 中相应传播距离处的归一化粒子数密度分布 n_i ($i = 0 \sim 4$)。图 5(a) 为 $z = 0.3$ cm 处的粒子数分布。初始时刻, 所有粒子处于基态 S_0 ($n_0 = 1.0$), 在脉冲前沿, 基态 (S_0) 粒子数减少, 激发态 (S_1) 粒子数增加。因为初始时刻粒子全部处于基态, 所以材料对脉冲前沿的吸收取决于 $\sigma_{01}n_0 I$ 。随着 S_1 能级粒子数增加 ($n_1 > 0$), 对脉冲的吸收由 $\sigma_{01}n_0 I + \sigma_{12}n_1 I$ 决定。由于 S_1 能级寿命 (τ_{10}) 远大于脉宽, 导致粒子数在 S_1 聚集, 在脉冲持续时间范围内极少粒子衰退至三重态第一激发态 (T_1) (图 5 中 n_3)。因此, 即使 σ_{34} 与 σ_{12} 差别不大, T_2 能级粒子数也极少 ($n_4 \sim 0$)。鉴于此, 各图中均没有给出 n_4 的分布。从图 5 可看出脉

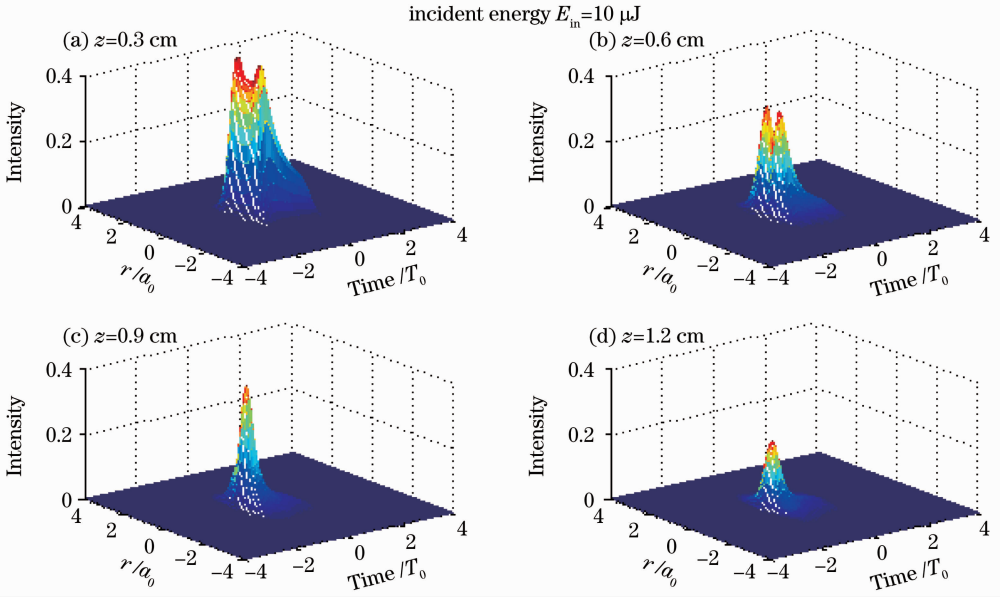


图 3 不同传播距离处的脉冲时空分布

Fig. 3 Pulse spatiotemporal shape at different propagation distance

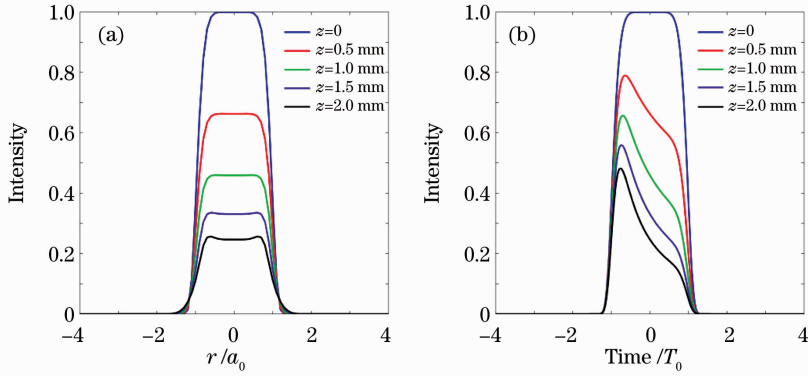


图 4 不同传播距离处的脉冲。(a)空间分布($t=0$);(b)时间分布($r=0$)

Fig. 4 Pulse (a) spatial ($t=0$) and (b) temporal ($r=0$) shape at different propagation distances

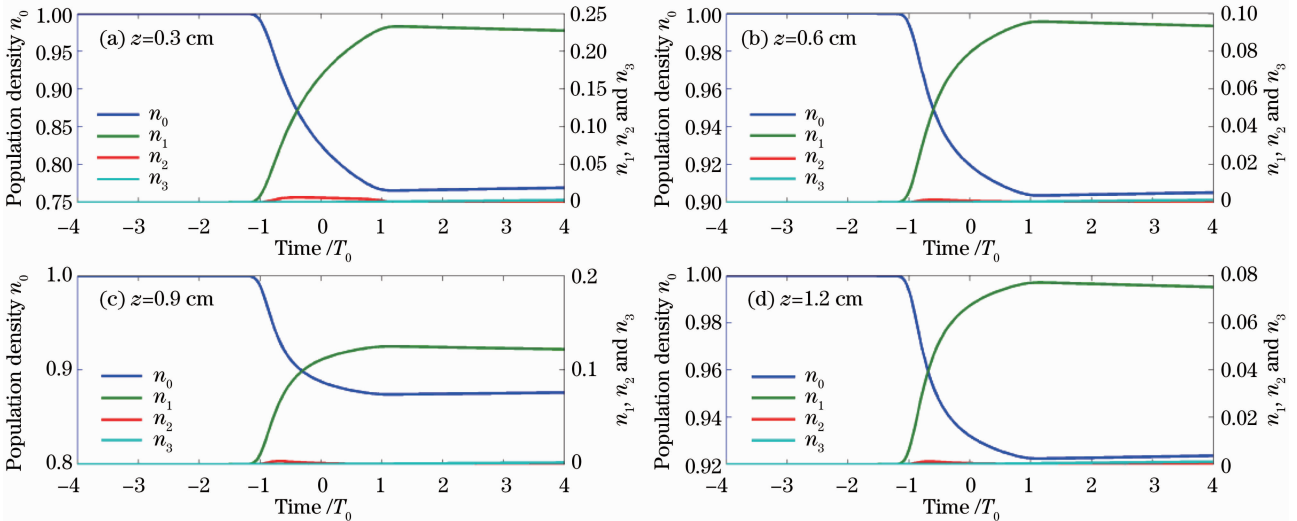


图 5 不同传输距离处各能级粒子数分布

Fig. 5 Population density of the four levels at $r=0$ at different propagation distances

冲后沿的 S_1 能级粒子数 (n_1) 多于前沿, 由于 RSA 效应主要来自于 S_1 能级粒子数的贡献, 材料对脉冲后沿的吸收强于前沿, 导致脉冲峰值向前移动。并且随着传播距离的增长, 前移量逐渐增加, 见图 4(b)。

图 5(b)~(d) 展示的动态响应过程与图 5(a) 类似, 不同的是, 随着传播距离的增加, 脉冲能量被之前的 RSA 过程大量吸收, 因而从基态跃迁至激发态的粒子数逐渐减少。

3.3 单重态第一激发态寿命的影响

前述分析表明, 之所以发生时间波形畸变, 是因为 S_1 能级寿命大于脉冲宽度, 跃迁至第一激发态的粒子数在脉宽范围内不会衰退至基态, 脉冲前沿聚

集的粒子通过 RSA 加强了对后沿的吸收, 从而导致了吸收的不均匀性, 这正是 RSA 累积性的体现。因此, 我们分析了缩短 S_1 能级寿命对脉冲响应特性的影响。图 6 比较了不同 S_1 能级寿命下传输 1.5 mm 的输出脉冲与入射脉冲的等高线图。图 6(a) 对应入射脉冲; 图 6(b) 表明输出脉冲峰值前移、后沿塌陷; 当 S_1 能级寿命缩短至 (40 ps) 与脉宽相当时, 输出脉冲峰值无明显变化, 但峰值前移量减小、后沿塌陷程度降低, 见图 6(c); 图 6(d) 表明, 当 S_1 能级寿命 (4 ps) 远小于脉宽时, 输出脉冲峰值略微升高, 但脉冲畸变可以忽略。

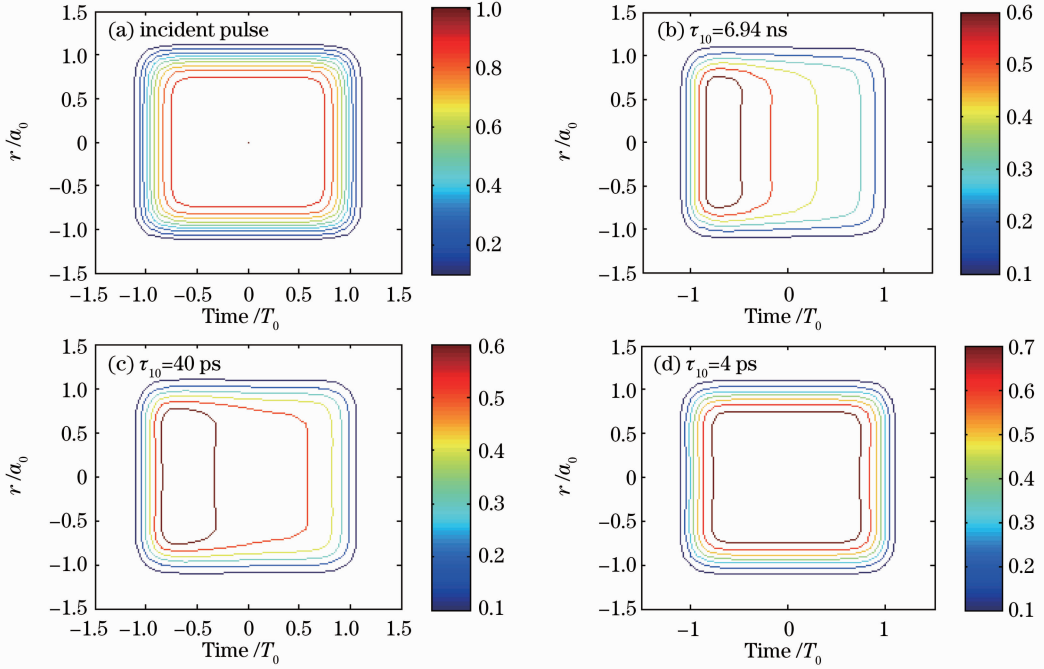


图 6 不同 S_1 能级寿命下输出波形 1.5 mm 处的等高线图

Fig. 6 Contour plots of the output pulse for different S_1 lifetimes at $z=1.5$ mm

图 7 为不同 S_1 能级寿命下的脉冲空间波形与时间波形。图 7(a) 展现的空间波形除幅度增大外, 随着 τ_{10} 减小空间波形未发生明显变化。由图 7(b) 可看出 τ_{10} 越小脉冲峰值前移量越小, 后沿塌陷越小。上述分析表明, 减小 τ_{10} 可降低脉冲波形时间畸

变, 但由于空间幅度增大, 时间波形后沿的吸收减弱, 因此对脉冲能量的吸收将减弱。然而对于 OLE 在脉冲整形、信号处理甚至激光聚变领域的应用, 过分地强调透射率是有失妥当的。

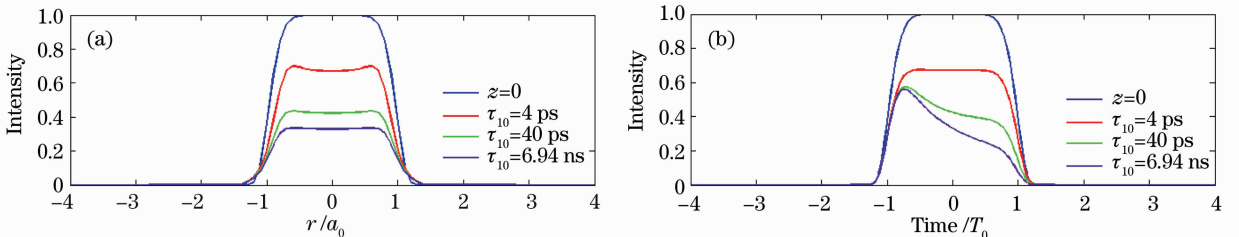


图 7 不同 S_1 能级寿命下输出波形 1.5 mm 处的 (a) 空间波形 ($t=0$) 和 (b) 时间波形 ($r=0$)

Fig. 7 Output pulse shape for different S_1 lifetimes at $z=1.5$ mm in (a) spatial ($t=0$) and (b) temporal ($r=0$) domains

4 结 论

由于 RSA 效应的累积性,超高斯脉冲在 RSA 作用下时空波形均发生畸变。输出脉冲时间波形峰值前移,后沿变缓,随着传输距离增加,前移量变大,脉冲能量不断减小,并且衍射现象逐渐明显。各能级粒子数动力学过程表明,缩短单重态第一激发态寿命可改善脉冲时间波形畸变。通过控制传输距离以及激发态寿命,输出脉冲时间畸变可完全避免,但能量透射率随之升高。在实际应用中,能量透射率与输出脉冲时空分布应综合考虑。

参 考 文 献

- 1 M. Etienne. Nonlinear Optical Spectroscopy and Imaging of Photonic Materials and Nanostructures [D]. New York: City University of New York, 2007. 15~16
- 2 Gao Lili, Chen Yu, He Nan *et al.*. Studies on the nonlinear optical and optical limiting properties of perfluorinated titanium (IV) phthalocyanines [J]. *Acta Optica Sinica*, 2010, **30**(4): 1122~1129
高丽丽, 陈 彧, 何 楠 等. 全氟取代的钛酞菁衍生物的非线性光学和光限幅性能研究 [J]. *光学学报*, 2010, **30**(4): 1122~1129
- 3 He Nan, Chen Yu, Liu Ying *et al.*. Phthalocyanine-based optical limiting functional materials [J]. *Chinese J. Lasers*, 2009, **36**(8): 1909~1917
何 楠, 陈 彧, 刘 莹 等. 酞菁类光限幅功能材料 [J]. *中国激光*, 2009, **36**(8): 1909~1917
- 4 J. M. Hales, M. Cozzuol, T. E. O. Screen *et al.*. Metalloporphyrin polymer with temporally agile, broadband nonlinear absorption for optical limiting in the near infrared [J]. *Opt. Express*, 2009, **17**(21): 18478~18488
- 5 Wang Xiaomei, Luo Jianfang, Wang Xiaohong *et al.*. Optical limiting of triphenylamine-based chromophores containing dibenzothiophene [J]. *Chinese J. Lasers*, 2010, **37**(10): 2599~2604
王筱梅, 罗建芳, 王晓宏 等. 含硫苈基的三苯胺多枝衍生物的光限幅特性 [J]. *中国激光*, 2010, **37**(10): 2599~2604
- 6 P. F. Wu, R. Philip, R. B. Laghumavarapu *et al.*. Optical power limiting with photoinduced anisotropy of azobenzene films [J]. *Appl. Opt.*, 2003, **42**(22): 4560~4565
- 7 Sun Jing, Fan Heliang, Wang Xinqiang *et al.*. Study on optical limiting property of organometallic compound [J]. *Chinese J. Lasers*, 2009, **36**(9): 2417~2421
孙 晶, 范贺良, 王新强 等. 一种金属有机配合物的光限幅性质研究 [J]. *中国激光*, 2009, **36**(9): 2417~2421
- 8 Y. W. Gao, M. J. Potasek. Effects of excited-state absorption on two-photon absorbing materials [J]. *Appl. Opt.*, 2006, **45**(11): 2521~2528
- 9 I. C. Khoo, A. Diaz. Multiple-time-scale dynamic studies of nonlinear transmission of pulsed lasers in a multiphoton-absorbing organic material [J]. *J. Opt. Soc. Am. B*, 2011, **28**(7): 1702~1710
- 10 Song Yinglin, Yang Miao, Wang Ruibo *et al.*. Performance of optical limiting in C₆₀ with ps pulse [J]. *Chinese J. Lasers*, 1994, **21**(8): 653~656
宋瑛林, 杨 淼, 王瑞波 等. C₆₀对 ps 光脉冲的限幅效应 [J]. *中国激光*, 1994, **21**(8): 653~656
- 11 Parilov Evgueni, M. J. Potasek. Generalized theoretical treatment and numerical method of time-resolved radially dependent laser pulses interacting with multiphoton absorbers [J]. *J. Opt. Soc. Am. B*, 2006, **23**(9): 1894~1910
- 12 S. Kim, D. Mclaughlin, M. J. Potasek. Propagation of the electromagnetic field in optical-limiting reverse saturable absorbers [J]. *Phys. Rev. A*, 2000, **61**(2): 025801
- 13 Li Fuli. Advanced Laser Physics [M]. Beijing: Higher Education Press, 2006. 49~50
李福利. 高等激光物理学 [M]. 北京: 高等教育出版社, 2006. 49~50
- 14 M. O. Scully, M. S. Zubairy. Quantum Optics [M]. Cambridge: Cambridge University, 1997. 161~164
- 15 Li Chunfei, Si Jinhai, Yang Miao. Excited-state nonlinear absorption in multi-energy-level molecular systems [J]. *Phys. Rev. A*, 1995, **51**(1): 569~576
- 16 M. J. Potasek, S. Kim, D. Mclaughlin. All optical power limiting [J]. *Journal of Nonlinear Optical Physics & Materials*, 2000, **9**(3): 343~364

栏目编辑:李文喆