

飞秒激光在 PPQ 有机高聚物中的传输特性研究*

赵应桥 朱鹤元 刘建华 孙迭麓 李富铭

(三束材料改性国家重点联合实验室复旦大学物理系, 上海 200433)

摘 要 有机高聚物是一种具有较大非线性系数和较快非线性响应时间的非线性材料。本文通过对含有二阶、三阶色散效应和非线性响应时间改进的非线性薛定谔方程进行数值模拟求解, 分析了飞秒光脉冲在有机高聚物聚苯基喹恶啉(PPQ)中的传输特性。结果表明, 脉冲在长波方向的自频移随非线性响应时间的增大先增大后减小, 利用这种关系有可能获得非线性响应时间的信息。

关键词 有机高聚物, 非线性响应时间, 飞秒脉冲自频移。

有机高聚物由于其较大的非线性系数和飞秒级的非线性响应时间, 成为在光通信、光计算、光信息处理等领域里极具竞争力的非线性材料^[1], 近些年来已经成为人们研究的热点。在这些应用中, 主要是利用三阶非线性效应, 目前只有有机高聚物和半导体材料能够使得许多利用三阶系数的全光器件成为现实, 而与半导体材料相比, 有机高聚物在材料的廉价性上又具有较为突出的优越性。根据理论计算和大量的实验证明^[2], 具有较大 π 键的大分子, 电子的离域性大, 具有较大的三阶非线性极化率 $\chi^{(3)}$, 并且分子链越长 $\chi^{(3)}$ 越大。PPQ^[3]正是具有这种特性且热稳定性和化学稳定性都较好的一种聚合物。有机高聚物比一般的无机材料(如石英)的三阶非线性系数可以高几个数量级, 但是其非线性响应时间也长几倍到几十倍。因而研究这种介质中的飞秒激光的传输不但对于实际中的光传输具有重要的意义, 而且也能得到这种材料的非线性响应的动态变化信息时间。本文利用分步傅里叶方法, 对含有二阶、三阶色散效应和非线性响应时间的改进的非线性薛定谔方程进行数值求解, 系统地分析了飞秒光脉冲在 PPQ 中的传输特性, 着重于研究非线性响应时间对脉冲传输的影响。

1 理论及数值模拟过程

本文采用如下改进的非线性薛定谔方程^[4]:

$$\left. \begin{aligned} \frac{\partial u}{\partial \zeta} + \Gamma u + \operatorname{sgn}(\beta_2) \frac{i}{2} \frac{\partial^2 u}{\partial \tau^2} - \delta \frac{\partial^3 u}{\partial \tau^3} = \frac{i}{\tau_R} \left[u j(\tau, \tau_R) + i s \frac{\partial}{\partial \tau} [u j(\tau, \tau_R)] \right] \\ j(\tau, \tau_R) = \int_0^{\infty} d\tau' \exp\left(-\frac{\tau'}{\tau_R}\right) |u(\tau - \tau')|^2 \end{aligned} \right\} \quad (1)$$

* 国家自然科学基金部分资助课题。

其中 u 为归一化的脉冲包络的复振幅, 其它参量定义如下:

$$\begin{aligned} \zeta &= |\beta_2| z T_0^2, & \tau &= (t - z/v_g)/T_0, & \delta &= \beta_3/6 |\beta_2| T_0, \\ s &= 2/\omega_0 T_0, & \tau_R &= t_r/T_0, & \Gamma &= \alpha L_D/2, & L_D &= T_0^2/|\beta_2| \\ \text{sgn}(\beta_2) &= \begin{cases} 1 & \beta_2 > 0 \\ -1 & \beta_2 < 0 \end{cases} \end{aligned}$$

z 为脉冲在薄膜中的传输距离, τ 为随脉冲包络移动的坐标系中的归一化时间坐标, v_g 为脉冲的群速度, ω_0 为中心频率, T_0 为初始脉冲的 $1/e$ 全宽度, α 为传输损耗, β_2 、 β_3 分别为二阶和三阶色散系数, t_r 为非线性响应时间, 非线性折射率系数 n_2 包含在归一化复振幅中: $u = [\gamma T_0^2/|\beta_2|]^{1/2} A$, A 为脉冲包络的复振幅, $\gamma = n_2 \omega_0/c A_{\text{eff}}$, A_{eff} 为光斑有效面积。

采用分步傅里叶的方法对其进行数值模拟, 其中色散项的作用可以表示为

$$D = [-\text{sgn}(\beta_2) i/2] \partial^2/\partial \tau^2 + \delta \partial^3/\partial \tau^3 - \Gamma \quad (2)$$

非线性项的作用可以表示为

$$N = (i/\tau_R) \{j(\tau, \tau_R) + (is/u) [uj(\tau, \tau_R)] \partial/\partial \tau\} \quad (3)$$

则此时分步傅里叶方法可以表示为

$$A(\zeta + \Delta\zeta, \tau) = \exp(D\Delta\zeta) \exp(N\Delta\zeta) A(\zeta, \tau) \quad (4)$$

取初始脉冲为双曲正割型, 将非线性项和色散项的作用分别在时间域和频率域中进行计算。

2 数值模拟结果分析

初步实验表明 PPQ 的非线性响应时间为 100 fs 左右^[3], 为了充分研究非线性响应时间对飞秒脉冲传输的影响, 本文选取了从 2 fs~ 200 fs 较宽范围的非线性响应时间进行了数值模拟, 其它参数的选取则基本上以 PPQ 为参考: $\beta_2 = 2 \times 10^{-24} \text{ s}^2/\text{m}$, $\beta_3 = 3 \times 10^{-39} \text{ s}^3/\text{m}$, $\alpha = 14 \text{ dB/cm}$, $T_{\text{FWHM}} = 80 \text{ fs}$, 峰值功率为 220 W, 光斑半径为 3 μm , 中心波长为 600 nm, $n_2 = 7 \times 10^{-16}$ ^[3], 薄膜的厚度取为 200 μm 。图 1 给出了非线性响应时间分别为 2 fs、10 fs、20 fs、50 fs、60 fs、100 fs、200 fs 等不同情况下的时间域与频率域中的脉冲传输变化。

在不存在色散的情况下, 由于非线性折射率的作用, 会产生依赖于光强的群速度色散, 而使脉冲产生自变陡效应, 亦即光脉冲在传输中会有后沿变陡的趋势。但是从图 1(a)、图 1(b) 中的时域脉冲的变化来看, 恰恰是相反的。可以这样认为: 非线性响应时间会导致脉冲的自频移^[4], 即使得脉冲在频谱上发生整体的红移现象。由于在正常色散的介质中, 长波的传输速度较短波的快, 因而使得脉冲在时间域里发生畸变, 大量的红移成份逐渐转向脉冲的前沿, 使脉冲的前沿变陡。这种效应抵销了脉冲的自变陡效应, 最终脉冲前沿变陡。图 2 为反常色散情况下的脉冲时间域和频率域不同非线性响应时间时的变化。负色散情况下, 长波的传输速度较短波的慢, 脉冲的自变陡效应和红移分量的负色散效应同时使脉冲的后沿变陡, 最后使脉冲后沿的变陡更加显著。

不同的非线性响应时间所产生的自频移显然是不同的, 在参考文献[4]中认为孤子在石英光纤等非线性响应时间较快的介质中传输时, 其自频移量随着非线性响应时间的增大而增大, 但从图 1(c)、图 1(d) 中可以发现脉冲在频率域里往长波方向的自频移并不随着非线性响应时间的变化而单调变化。当非线性响应时间从 200 fs 逐渐减小时, 脉冲频谱的红移量是逐渐增大的, 随着非线性响应时间的进一步减小, 红移量的显著增加, 如前面所述, 会使得脉冲的前沿变陡, 这样会使脉冲产生较大的正啁啾量, 反映在频谱上会增加兰频成份。从图 1

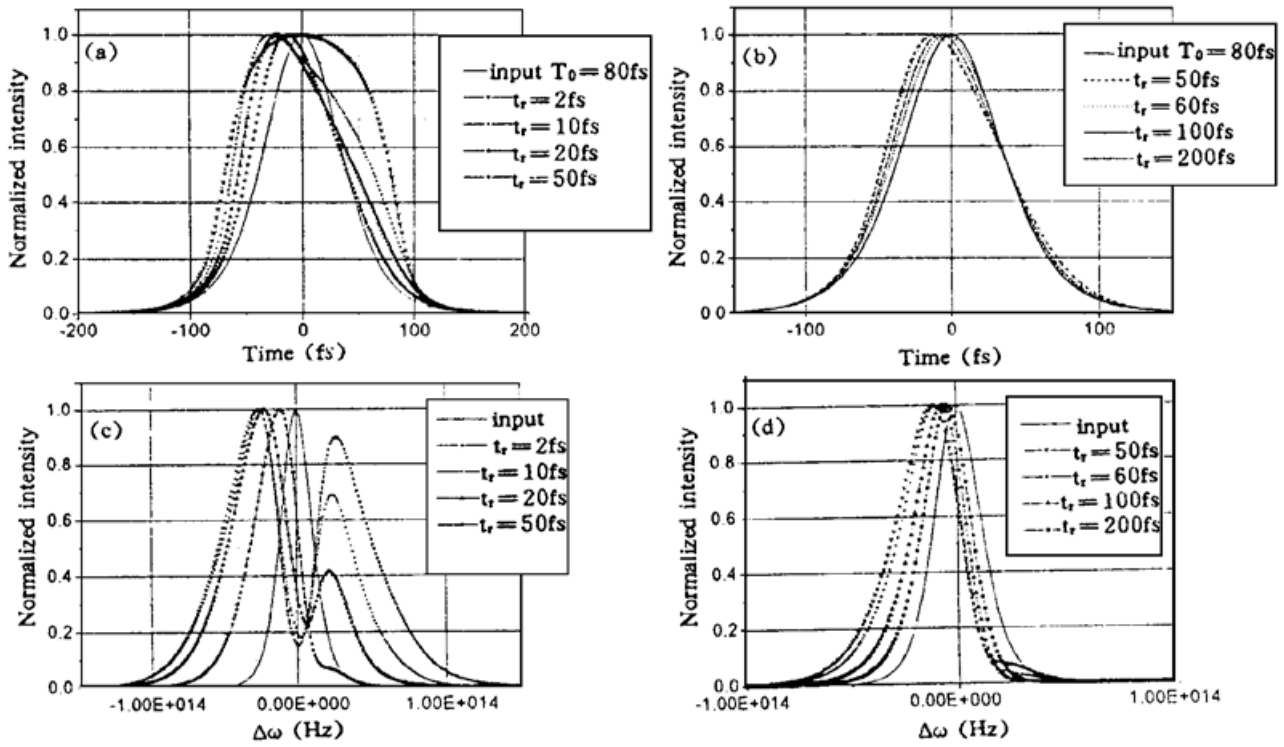


Fig. 1 The changing of pulse shape in time domain and frequency domain with different delayed nonlinear response time under the condition of normal dispersion, (a) delayed nonlinear response time $t_r = 2, 10, 20, 50$ and pulse shape is in time domain, (b) delayed nonlinear response time $t_r = 50, 60, 100, 200$ and pulse shape is in time domain, (c) and (d) pulse shape is in frequency domain with the same t_r as a and b respectively

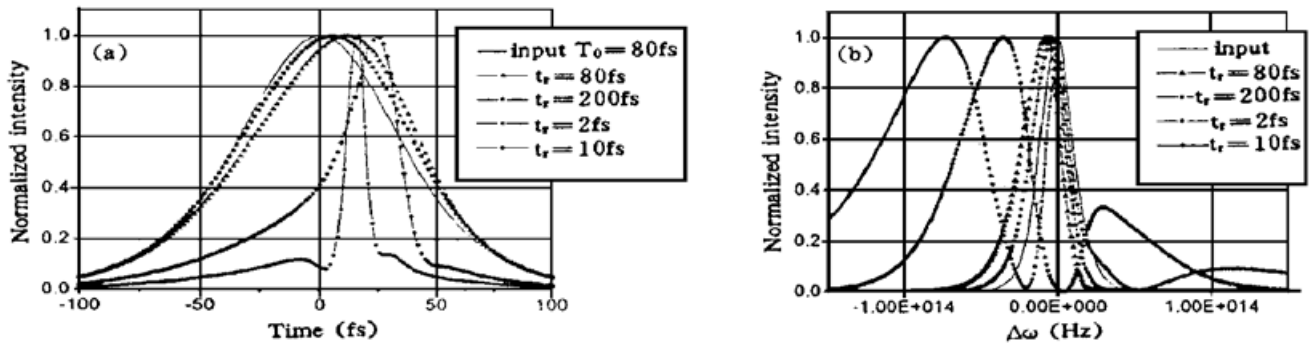


Fig. 2 The changing of pulse shape in time domain and frequency domain with different delayed nonlinear response time under the condition of abnormal dispersion, (a) delayed nonlinear response time $t_r = 2, 10, 80, 100$ and pulse shape is in time domain, (b) pulse shape is in frequency domain with the same t_r as (a)

中可见, 在非线性响应时间达到 60 fs 时, 此时脉冲的频谱在主峰继续红移的同时在兰频方向产生了一个次峰, 并且在非线性响应时间的继续减小和红移主峰的继续红移的同时, 越来越接近红移的主峰, 使得从整个频谱来看, 脉冲频谱的往长波方向的自频移变小了。故认为脉冲的自频移随着非线性响应时间的减小是先增大再减小的, 而并不是简单的单调变化的。

在负色散(取 $\beta_2 = 2 \times 10^{-24} \text{ s}^2/\text{m}$)情况下, 时间域中脉冲[图 2(a)]的变化与正色散的情况相反, 但是在频域[图 2(b)]里两者的变化趋势基本相同。其原因可解释为: 虽然在负色散下脉冲的自频移和自变陡效应导致的是脉冲后沿的加剧变陡, 但是非线性响应时间的减小, 使得有效的非线性折射率系数变大, 因而其产生的自相位调制逐渐增大以致可以与起初较大

负色散量相互补偿,使得时域脉冲逐渐窄化,也就是说此时时域上脉冲的前沿也会因窄化而变陡,并最终产生与正常色散相同的效果,使得最后的整个频谱的红移量变小了。与正常色散情况相比,不同的是时域脉冲变窄了(正常色散情况下随着非线性响应时间的减小,时域脉冲几乎展宽成方波),且需在非线性响应时间更短的情况下,红移量才会转而变小。

另外从整个光谱展宽情况来看,非线性响应时间的增大会使得脉冲频谱的展宽量显著减小,从光谱展宽的角度认为有效的非线性系数减小了,所以较快的非线性响应时间不但对提高信息的处理和传输速度具有重要的意义,从一定的角度还可以认为其对提高有效非线性系数也是至关重要的。由于薄膜的厚度不会很大,因而三阶色散的影响较小,但是在负色散情况下,最后脉冲的变窄,三阶色散开始起作用,使时域脉冲在底部发生小的振荡。

结 论 本文通过数值模拟包含有二阶、三阶色散效应和非线性响应时间的改进的非线性薛定谔方程,系统地分析了飞秒光脉冲在有机高聚物 PPQ 中的传输特性,结果表明:脉冲往长波方向的自频移随非线性响应时间的增大先增大然后又减小,利用这种关系有可能获得非线性响应时间的详细的信息。另外在正常色散和反常色散情况下,脉冲在时间域里还会发生不同变陡和展宽、压缩效应。

参 考 文 献

- [1] J. L. Bredas, C. Adant, P. Tackx *et al.*, Third-order nonlinear optical response in organic materials: theoretical and experimental aspects. *Chem. Rev.*, 1994, **94**(1) : 243~ 278
- [2] P. N. Prasad, D. J. Williams, *Introduction to Nonlinear Optical Effects in Molecules and Polymers*. New York, Wiley, 1991 : Chapt 1
- [3] Jun Yan, Jianyao Wu, Heyuan Zhu *et al.*, Third-order nonlinear property of a heterocyclic ladder polymer. *Opt. Comm.*, 1995, **116**(4/6) : 425~ 427
- [4] G. P. Agrawal, *Nonlinear Fiber Optics*, New York, Academic Press, 1989 : Chapt 2

Propagation of Femtosecond Optical Pulse in Organic Polymers ·PPQ

Zhao Yingqiao Zhu Heyuan Liu Jianhua Sun Diechi Li Fuming

(State Key Joint Laboratory for Modification by Triple Beams, Department of Physics,
Fudan University, Shanghai 200433)

(Received 16 December 1995)

Abstract Organic polymers are attractive nonlinear materials because of their both large nonlinear coefficient and ultrafast response time. By use of the modified nonlinear Schrodinger equation, we have investigated numerically the effect of delayed nonlinear response time, as well as second- and third-order dispersion, on the propagation of femtosecond optical pulse. It has been shown that the red-shift due to delayed nonlinear response time in frequency domain increases with the increasing of delayed nonlinear response time primarily, and then decreases when the delayed nonlinear response time exceeds a certain value.

Key words organic polymer, delayed nonlinear response time, self-frequency-shift.