

# 纳秒超高斯型激光脉冲在 C<sub>60</sub> 分子介质中的反饱和吸收光限幅行为

刘纪彩\*, 赵亚男, 张莹, 成飞

华北电力大学数理学院, 北京 102206

**摘要** 利用克兰克-尼科尔森差分法求解激光场的傍轴波动方程和粒子数速率方程, 研究纳秒超高斯型激光脉冲与富勒烯 C<sub>60</sub> 分子的相互作用过程, 并模拟不同阶次强场超高斯型激光脉冲在介质中的传播演化情况。当强场超高斯脉冲在 C<sub>60</sub> 分子介质中传播时, 表现出明显的反饱和吸收光限幅效应, 而且脉冲的时空包络形状在传播过程中被重塑, 由初始入射时的具有中心对称性的平顶型时间包络分布逐渐转变成具有非中心对称的尖顶型激光脉冲分布, 而且脉冲持续时间也缩短了一个数量级; 随着输入超高斯型脉冲时间阶次的不断增大, 在传播过程中被吸收的脉冲不断增多, 出射脉冲宽度逐渐减小。

**关键词** 超快光学; 脉冲整形; 反饱和吸收; 光限幅; 超高斯型激光脉冲; 绝热近似; 迟至时间坐标系

中图分类号 O437

文献标识码 A

doi: 10.3788/AOS201939.0832001

## Reverse Saturable Absorption-Induced Optical Power Limiting Behavior of Nanosecond Hyper-Gaussian Laser Pulses in C<sub>60</sub> Molecular Medium

Liu Jicai\*, Zhao Yanan, Zhang Ying, Cheng Fei

College of Mathematics and Physics, North China Electric Power University, Beijing 102206, China

**Abstract** The interaction process between a nanosecond hyper-Gaussian laser pulse and a fullerene C<sub>60</sub> molecular medium is studied by numerically solving the paraxial wave and particle rate equations through the hyper-Gaussian laser pulse Crank-Nicholson difference method. The evolution of the strong hyper-Gaussian laser pulse with different orders is simulated. Optical power limiting behavior caused by reverse saturable absorption is observed when the strong hyper-Gaussian pulse is propagating in the C<sub>60</sub> molecular medium. The spatiotemporal shape of the hyper-Gaussian pulse can be obviously reshaped during propagation, and incident pulse with flat-topped time envelope distribution and central symmetry turns into the pulse with tip laser pulse distribution and asymmetry gradually. The pulse width decreases by an order of magnitude owing to the strong reverse saturable absorption of C<sub>60</sub>. Thus, the higher the order of the hyper-Gaussian pulse is, the more the reverse saturable absorption is, and the narrower the width of the output pulse is.

**Key words** ultrafast optics; pulse shaping; reverse saturable absorption; optical power limiting; hyper-Gaussian laser pulse; adiabatic approximation; retarded time coordinate

**OCIS codes** 320.5540; 020.4180; 020.2649; 190.5530

## 1 引 言

随着各种激光技术的不断发展, 高功率、高强度激光器的性能不断提升, 激光已经逐步融入到人们生活的点点滴滴, 并在人们的生活中发挥了巨大的作用, 而激光类武器更是在军事防御中扮演着不可

或缺的角色<sup>[1-2]</sup>。另一方面, 具有较高亮度的现代激光光源对各种光学传感器构成了潜在危险, 为了保护材料免受光损伤, 各类光限幅材料和光限幅机制也成为强场非线性光学领域研究的热点<sup>[3-8]</sup>。光脉冲在非线性介质中的传播主要受到非线性散射、非线性折射和非线性吸收等的影响<sup>[9-13]</sup>, 其中双光子

收稿日期: 2019-03-14; 修回日期: 2019-03-27; 录用日期: 2019-04-01

基金项目: 国家自然科学基金(11574082)、中央高校基本科研业务费(2018MS050)

\* E-mail: jicailiu@ncpu.edu.cn

吸收与反饱和吸收是目前应用较为广泛的两种基于非线性吸收过程的光限幅机制,受到了学者们的广泛关注<sup>[14-17]</sup>。

通常所说的双光子吸收是指一步双光子吸收过程,非线性光学介质在强光的激发下,通过一个虚中间态同时吸收两个光子,从基态跃迁到高能激发态<sup>[9-11]</sup>。若中间态对应一个实际存在的能级时,介质粒子可以先吸收一个光子从基态单光子跃迁到中间实能态,再吸收另一光子从中间实能态单光子跃迁到双光子吸收态,构成两步双光子吸收过程<sup>[18-20]</sup>。若在两步双光子吸收过程中,激发态的吸收截面大于基态的吸收截面,则会形成反饱和吸收效应。一般来说,在具有反饱和吸收特性的非线性光学介质中,当入射光强较弱时,体系主要发生基态的线性吸收,随着入射光强的增大,强的激发态吸收开始起主要作用,光场透射率随着入射光强度的增加而减小,从而使得强场激光脉冲在介质中传播时表现出反饱和和吸收光限幅行为。

在各种非线性光学材料中,具有较大共轭  $\pi$  电子体系的分子材料因具有较大的非线性光学极化率和快速的非线性光学响应速率而引起了人们极大的研究兴趣<sup>[3]</sup>。与一般的具有平面  $\pi$  电子共轭结构的有机分子化合物不同,富勒烯  $C_{60}$  分子是由 60 个碳原子构成的一个球形,具有三维球面的  $\pi$  电子共轭结构,因而具有更加优异的非线性光学特性<sup>[21-23]</sup>。例如,  $C_{60}$  分子具有较宽的吸收频带、较大的系间跨越速率、较长的三重态寿命、较弱的基态吸收以及很强的三重态吸收,这些性质决定了  $C_{60}$  是一种性能良好的反饱和吸收光限幅材料。

本文在对高斯型激光脉冲及激光脉冲序列在  $C_{60}$  分子介质中的光限幅行为研究的基础上<sup>[24-25]</sup>,对超高斯型激光脉冲在  $C_{60}$  分子介质中的反饱和和吸收光限幅效应进行研究,利用克兰克-尼科尔森差分方法<sup>[26]</sup>求解粒子数速率方程和光电场傍轴波动方程,研究具有不同时空包络的超高斯型脉冲与  $C_{60}$  分子的强场非线性光学相互作用过程,分析具有不同时空包络形状的超高斯型激光脉冲在反饱和和吸收过程中的光限幅行为。

## 2 基本原理

### 2.1 迟至时间坐标系下的电磁场傍轴波动方程

在光与物质相互作用的半经典理论中,激光场被看作是具有确定振幅和相位的经典电磁场,用麦克斯韦方程组描述其传播演化过程。在不存在自由

电荷和自由电流的非磁性光学介质中,如果在一个波长范围内,介质极化率是位置矢量  $\mathbf{r}$  的慢变函数,利用麦克斯韦方程组中的电磁场旋度方程可以得到电场强度,其满足如下波动方程<sup>[24]</sup>

$$\nabla^2 \epsilon(\mathbf{r}, t) - \frac{n_0^2}{c^2} \frac{\partial^2 \epsilon(\mathbf{r}, t)}{\partial t^2} = \frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2 \mathcal{P}(\mathbf{r}, t)}{\partial t^2}, \quad (1)$$

式中:  $\epsilon_0$  为真空电导率;  $n_0$  为介质的线性折射率;  $c$  为真空中的光速; 波矢大小  $k$  与光场频率  $\omega$  之间的关系为  $k = n_0 \omega / c$ 。角频率为  $\omega$  的电场  $\epsilon(\mathbf{r}, t)$  及相应的宏观极化强度  $\mathcal{P}(\mathbf{r}, t)$  可用行波形式表示为

$$\begin{cases} \epsilon(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{2} \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) \exp[i(\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - \omega t)] + c.c. \\ \mathcal{P}(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{2} \mathbf{P}(\mathbf{r}, t) \exp[i(\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - \omega t)] + c.c. \end{cases}, \quad (2)$$

式中:  $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$  和  $\mathbf{P}(\mathbf{r}, t)$  分别为电场强度和极化强度的包络分布,是空间位置  $\mathbf{r}$  和时间  $t$  的慢变函数;  $c.c.$  表示前一项的复共轭。假设电磁场沿  $z$  方向传播(波矢  $\mathbf{k} = \hat{e}_z k$ ),  $\hat{e}_z$  为  $z$  方向的单位矢量,在慢变幅近似条件下<sup>[9]</sup>,光电场在介质中的传播演化过程满足以下傍轴波动方程

$$\left( \frac{\partial}{\partial z} + \frac{1}{c} \frac{\partial}{\partial t} - \frac{i}{2k} \Delta_{\perp} \right) \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \frac{ik}{2\epsilon_0} \mathbf{P}(\mathbf{r}, t), \quad (3)$$

式中:  $\Delta_{\perp}$  为垂直于传播方向的平面内的二维拉普拉斯算子。宏观极化强度  $\mathbf{P}$  将光电场的演化过程和介质粒子微观状态的演化过程耦合在一起,  $\mathbf{P} = N(\rho_{S_1 S_0} \mathbf{d}_{S_0 S_1} + \rho_{S_n S_1} \mathbf{d}_{S_1 S_n} + \rho_{T_2 T_1} \mathbf{d}_{T_1 T_2})$ , 其中  $N$  为介质粒子数密度;  $\mathbf{d}_{ij}$  是  $|i\rangle$  和  $|j\rangle$  两能级之间的跃迁电偶极矩;  $\rho_{ij}$  ( $i \neq j$ ) 是密度矩阵的各个非对角元;  $|S_0\rangle$ 、 $|S_1\rangle$ 、 $|S_n\rangle$  和  $|T_1\rangle$ 、 $|T_2\rangle$  分别表示五能级体系的三个单重态和两个三重态。利用绝热近似可以将密度矩阵的非对角元用密度矩阵的对角元即各能级粒子数密度  $\rho_{ii}$  来表示,因此宏观极化强度  $\mathbf{P}$  也可以表示为各能级粒子数密度的函数。若将宏观极化强度  $\mathbf{P}$  中表示光吸收的虚部和表示光折射的实部分开,则傍轴波动方程(3)式可表示为

$$\left( \frac{\partial}{\partial z} + \frac{n_0}{c} \frac{\partial}{\partial t} - \frac{i}{2k} \Delta_{\perp} \right) \mathbf{E} = - \left( \frac{N \sigma_{\text{tot}}}{2} - ik \frac{\delta_n}{n_0} \right) \mathbf{E}, \quad (4)$$

式中:  $\sigma_{\text{tot}} = [2k \text{Im}(\mathbf{P}/\mathbf{E})]/(N\epsilon_0)$  是介质的总吸收截面;  $\delta_n = [n_0 \text{Re}(\mathbf{P}/\mathbf{E})]/\epsilon_0$  是依赖于光场强度的非线性折射率;  $\text{Im}(\mathbf{P}/\mathbf{E})$  和  $\text{Re}(\mathbf{P}/\mathbf{E})$  分别表示  $\mathbf{P}/\mathbf{E}$  的虚部和实部。由于在短距离传播过程中自聚焦或自散焦效应比较微弱,因此本研究忽略了介质非线性

折射率对光场演化过程的影响。对于五能级介质粒子体系,总的光吸收截面  $\sigma_{\text{tot}}$  可以用各能级之间的单光子吸收截面  $\sigma_{S_1S_0}$ 、 $\sigma_{S_nS_1}$ 、 $\sigma_{T_2T_1}$  表示:

$$\sigma_{\text{tot}} = \sigma_{S_1S_0}(\rho_{S_0} - \rho_{S_1}) + \sigma_{S_nS_1}(\rho_{S_1} - \rho_{S_n}) + \sigma_{T_2T_1}(\rho_{T_1} - \rho_{T_2}). \quad (5)$$

在(4)式中同时存在对时间  $t$  和位置  $z$  的一阶导数项,为了减少(4)式的导数项,引入迟至时间变换  $t' = t - n_0 z/c$ ,得到在迟至时间坐标系下的傍轴波动方程:

$$\left( \frac{\partial}{\partial z} - \frac{i}{2k} \Delta_{\perp} \right) \mathbf{E}(\mathbf{r}, t') = - \left( \frac{N\sigma_{\text{tot}}}{2} - ik \frac{\delta_n}{n_0} \right) \mathbf{E}(\mathbf{r}, t'). \quad (6)$$

在迟至时间坐标系中,波动方程(6)式中的时间导数项消失,但是电场和极化强度矢量仍然是迟至时间  $t'$  的函数。迟至时间坐标系的变换既简化了波动方程的形式,同时还可以降低数值模拟的计算工作量。

## 2.2 粒子数速率方程

在光学波段范围内,可以用包含三个单重态  $|S_0\rangle$ 、 $|S_1\rangle$ 、 $|S_n\rangle$  和两个三重态  $|T_1\rangle$ 、 $|T_2\rangle$  的五能

级模型来描述富勒烯  $C_{60}$  分子在光场激发下的反饱和和吸收过程,该五能级模型如图 1 所示。

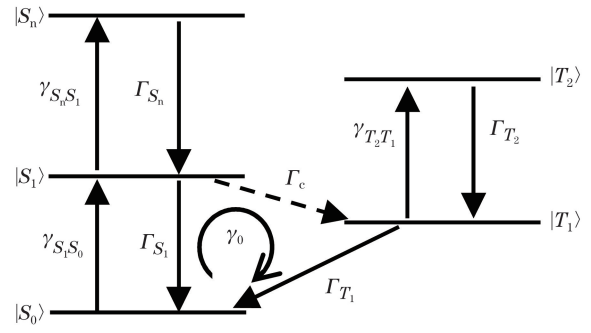


图 1 五能级模型示意图

Fig. 1 Diagram of five-level system

在密度矩阵方程中,当密度矩阵非对角元的弛豫速率远大于对角元的弛豫速率时,在非对角元的相干弛豫时间内,各能级粒子数布居情况的变化可以忽略。因此本研究采用绝热近似,假设在能级粒子数布居发生变化的有限时间范围内,体系非对角元由于快速弛豫效应一直处于稳态,令密度矩阵非对角元的时间导数为零,可以得到描述五能级体系粒子数演化的速率方程,即

$$\begin{cases} \frac{\partial}{\partial t} \rho_{S_0} = -\gamma_{S_1S_0}(t)(\rho_{S_0} - \rho_{S_1}) + \Gamma_{S_1} \rho_{S_1} + \Gamma_{T_1} \rho_{T_1} \\ \left( \frac{\partial}{\partial t} + \Gamma_{S_1} + \Gamma_c \right) \rho_{S_1} = \Gamma_{S_n} \rho_{S_n} - \gamma_{S_nS_1}(t)(\rho_{S_1} - \rho_{S_n}) + \gamma_{S_1S_0}(t)(\rho_{S_0} - \rho_{S_1}) \\ \left( \frac{\partial}{\partial t} + \Gamma_{S_n} \right) \rho_{S_n} = \gamma_{S_nS_1}(t)(\rho_{S_1} - \rho_{S_n}) \\ \left( \frac{\partial}{\partial t} + \Gamma_{T_1} \right) \rho_{T_1} = -\gamma_{T_2T_1}(t)(\rho_{T_1} - \rho_{T_2}) + \Gamma_c \rho_{S_1} + \Gamma_{T_2} \rho_{T_2} \\ \left( \frac{\partial}{\partial t} + \Gamma_{T_2} \right) \rho_{T_2} = \gamma_{T_2T_1}(t)(\rho_{T_1} - \rho_{T_2}) \end{cases}, \quad (7)$$

式中: $\Gamma_c$  是  $|S_1\rangle$  态到  $|T_1\rangle$  态的系间窜越速率; $\Gamma_{S_1}$ 、 $\Gamma_{S_n}$ 、 $\Gamma_{T_1}$ 、 $\Gamma_{T_2}$  分别为态  $|S_1\rangle$ 、 $|S_n\rangle$ 、 $|T_1\rangle$ 、 $|T_2\rangle$  的粒子数衰减速率; $\gamma_{S_1S_0}(t)$ 、 $\gamma_{S_nS_1}(t)$ 、 $\gamma_{T_2T_1}(t)$  分别为外加激光场激发的  $|S_0\rangle$  与  $|S_1\rangle$ 、 $|S_1\rangle$  与  $|S_n\rangle$ 、 $|T_1\rangle$  与  $|T_2\rangle$  各能态之间的单光子跃迁速率。在频率为  $\omega$ 、强度为  $I(t)$  的光场作用下,  $|i\rangle$  和  $|j\rangle$  两相邻能级之间的单光子跃迁速率  $\gamma_{ij}(t)$  可以用相应的吸收截面  $\sigma_{ij}$  表示:

$$\gamma_{ij}(t) = \frac{\sigma_{ij} I(t)}{\hbar \omega}. \quad (8)$$

同时,由于体系各激发态具有皮秒量级的快速弛豫时间,而基态和三重态之间有效粒子数的转移时间以及入射脉冲的持续时间具有纳秒的数量级,因此

可以假设在基态和最低三重态的能级粒子数布居  $\rho_{S_0}(t)$ 、 $\rho_{T_1}(t)$  发生变化的有限时间范围内,其余激发态的粒子数布居  $\rho_{S_1}(t)$ 、 $\rho_{S_n}(t)$ 、 $\rho_{T_2}(t)$  由于快速衰减作用一直处于稳态,从而可以将描述五能级体系粒子数布居的 5 个偏微分方程简化为关于基态粒子数演化情况的一个偏微分方程,即

$$\frac{\partial}{\partial t} \rho_{S_0} = -\gamma_0(t) \rho_{S_0} + \Gamma_{T_1} R(t), \quad (9)$$

式中: $\gamma_0(t) = \gamma_{S_1S_0}(t) \Phi(t) + \Gamma_{T_1} Q(t)$  表示基态  $|S_0\rangle$  与最低三重态  $|T_1\rangle$  之间的有效粒子数转移速率,其中  $\Phi(t) = \Gamma_c / [\Gamma_{S_1} + \Gamma_c + \gamma_{S_1S_0}(t)]$ ,  $Q(t) = R(t) \{1 + \omega_{S_1}(t) [1 + \omega_{S_n}(t)]\}$ ,  $R(t) = 1 / [1 + \omega_{T_2}(t)]$ ,  $\omega_{S_1}(t) = \gamma_{S_1S_0}(t) / [\Gamma_{S_1} + \Gamma_c + \gamma_{S_1S_0}(t)]$ ,

$\omega_{S_n}(t) = \gamma_{S_n S_1}(t) / [\Gamma_{S_n} + \gamma_{S_n S_1}(t)]$ 、 $\omega_{T_2}(t) = \gamma_{T_2 T_1}(t) / [\Gamma_{T_2} + \gamma_{T_2 T_1}(t)]$  分别表示  $|S_1\rangle$ 、 $|S_n\rangle$ 、 $|T_2\rangle$  各激发态的受激辐射权重。

### 3 数值计算方法

为了减少计算工作量,加快计算速度,在迟至时间坐标系内利用二阶精度的克兰克-尼科尔森差分法<sup>[24-26]</sup>求解激光场的傍轴波动方程和粒子数速率方程,模拟纳秒超高斯型激光脉冲在富勒烯  $C_{60}$  分子介质中的传播演化过程。入射超高斯型激光脉冲的时空包络表达式为

$$E(r, z, t) = E_0 \frac{\omega_0}{\omega(z)} \exp\left[-\frac{r^2}{\omega^2(z)}\right] \times \exp\left\{-\frac{\ln[2(t-t_0)^{2m}]}{2\tau_0^{2m}}\right\}, \quad (10)$$

式中:  $E_0$  为电场峰值强度;  $\omega_0$  为光束的束腰半径;  $\omega(z) = \omega_0 \sqrt{1+(z/l_0)^2}$  是位置  $z$  处的光斑半径;  $r = \sqrt{x^2 + y^2}$  是垂直于传播方向的横向平面内的点  $(x, y)$  与  $z$  轴的垂直距离;  $\tau_0$  是脉冲光场强度时间分布的半峰全宽;  $m$  表示超高斯脉冲的时间包络阶数,决定了脉冲时空包络的形状,当  $m=1$  时,脉冲具有高斯型的时空分布,随着  $m$  的增大,脉冲包络逐渐变成平顶型的超高斯脉冲。各输入脉冲参量的取值分别为:束腰半径  $\omega_0 = 1.0$  mm,脉冲持续时间  $\tau_0 = 10$  ns,光场峰值强度  $I_0 = c_0 E_0^2 / 2 = 100$  MW/cm<sup>2</sup>,脉冲峰值出现在  $t_0 = 40$  ns。因为入射脉冲激光场具有柱对称性分布,其空间横向分布各向同性,与辐角无关,因此傍轴波动方程中的拉普拉斯算符可以表示为  $\Delta_{\perp} = \partial^2 / \partial r^2 + (1/r)(\partial / \partial r)$ 。

$C_{60}$  分子各能级的单光子吸收截面、衰减速率和系间窜越速率的具体数值与实验条件具有较强的相关性,在数值模拟中参考 Ebbesen 等<sup>[27]</sup> 的实验数据,取入射波长为 650 nm 时,各吸收截面为  $\sigma_{S_1 S_0} = 0.2 \times 10^{-22}$  m<sup>2</sup>、 $\sigma_{S_n S_1} = 9.2 \times 10^{-22}$  m<sup>2</sup>、 $\sigma_{T_2 T_1} = 14.2 \times 10^{-22}$  m<sup>2</sup>,衰减速率和系间窜越速率分别取为  $\Gamma_{T_1}^{-1} = 280$   $\mu$ s,  $\Gamma_{S_n}^{-1} = \Gamma_{T_2}^{-1} = 1$  ps,  $(\Gamma_{S_1} + \Gamma_c)^{-1} \approx \Gamma_c^{-1} = 1.2$  ns。初始时刻介质分子处于基态  $\rho_{S_0} = 1$ ,分子数密度  $N = 10^{26}$  m<sup>-3</sup>,分子介质的总长度取为  $L = 0.5$  mm。在数值计算过程中,为了保证计算结果具有较高的收敛性和准确性,取时间步长  $\Delta t = \tau_0 / 50 = 0.2$  ns,空间步长  $\Delta z = L / 50 = 0.01$  mm,  $\Delta r = \omega_0 / 50 = 0.02$  mm。

### 4 计算结果与讨论

通过数值求解迟至时间坐标系中的傍轴波动方

程和速率方程,分析了具有不同时间包络形状的超高斯型纳秒脉冲激光在  $C_{60}$  分子介质中的传播演化情况。图 2 给出了  $m=2$  的超高斯光束在  $C_{60}$  分子介质中传播到不同位置处的光场强度的时空分布情况。可以看出,在脉冲传播过程中,由于激光场和  $C_{60}$  介质之间的强场非线性光学相互作用,脉冲强度急剧减小,光场峰值强度减小了近一个数量级,表现出很强的光限幅效应;脉冲纵向时间分布发生了巨大的变化,脉冲被强烈地整形,由初始入射的具有中心对称性的平顶型光场分布逐渐演化成了具有非中心对称的尖顶型的激光脉冲分布;由于脉冲后沿被强烈吸收,在  $r=0.02$  mm 近光轴处的脉冲宽度从入射时的 10 ns 减小为出射时的 2.5 ns。

光场分布发生以上演化的主要原因如下:激光场在分子介质中传播时,脉冲的前沿部分主要是和处于基态的  $C_{60}$  分子发生相互作用,激光场由于分子基态的线性吸收而略有减弱;随着时间的推进,与分子作用的脉冲强度增加,使得分子基态和最低三重态之间的有效粒子数转移速率增加,因此脉冲的主体部分主要发生的是(单重态 $\rightarrow$ 单重态) $\times$ (三重态 $\rightarrow$ 三重态)的两步非线性双光子吸收,同时由于  $C_{60}$  分子最低三重态的吸收截面远大于基态的吸收截面,对应的两步双光子吸收过程属于反饱和吸收,吸收强度随光场强度的增加而增大,从而使得光场强度较大的脉冲主体部分被强烈吸收,脉冲强度明显减弱,具有良好的反饱和吸收光限幅效应。同时,由于  $C_{60}$  分子具有较快的系间交叉速率,与脉冲后沿发生相互作用的主要是被激发后通过系间交叉转移到最低三重态的分子,因此虽然入射脉冲的前沿和脉冲后沿具有关于中心时间点对称的光场分布,但是由于较强的三重态吸收作用,脉冲后沿也被强烈吸收,从而使得脉冲被整形而且脉冲持续时间缩短。

通过对不同时间阶次的超高斯型激光脉冲传播过程进行模拟,发现入射超高斯型脉冲的时间阶数越高,在介质末端的出射脉冲宽度越小。图 3 所示为时间包络阶次  $m=5$  的入射超高斯型脉冲传播到  $C_{60}$  分子介质末端  $L=0.05$  mm 处的光场强度分布。比较图 2 和图 3(a) 可以看出,虽然  $m=5$  的超高斯型脉冲的初始平台宽度比  $m=2$  的超高斯型脉冲的初始平台宽度宽得多,但是其出射脉冲宽度比  $m=2$  的出射脉冲宽度更窄,例如,在  $r=0.02$  mm 近光轴处,  $m=5$  的超高斯型脉冲的宽度从入射时的 10 ns 减小到出射时的 0.9 ns,这主要是因为入射超

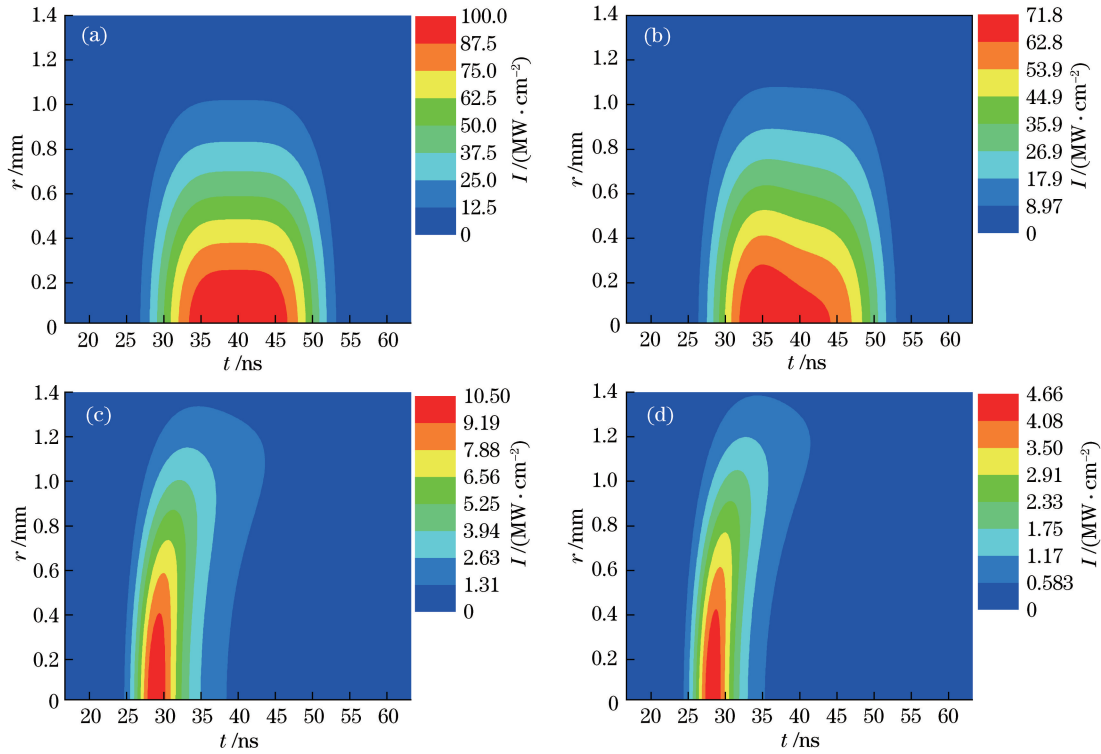


图 2 时间包络阶次为  $m=2$  的入射超高斯型脉冲在长度  $L=0.5$  mm 的  $C_{60}$  分子介质中的传播演化情况。(a) 初始入射的超高斯型脉冲的光场强度分布;(b) 传播到介质  $L/50$  处的光场强度分布;(c) 传播到介质一半长度  $L/2$  处的光场强度分布;(d) 传播到介质末端  $L$  处的光场强度分布

Fig. 2 Propagation of hyper-Gaussian laser pulse with temporal shape order  $m=2$  in  $C_{60}$  molecular medium with length  $L=0.5$  mm. (a) Intensity distribution of initial incident hyper-Gaussian pulse; (b) field intensity distribution at propagation distance of  $L/50$ ; (c) field intensity distribution at propagation distance of  $L/2$ ; (d) field intensity distribution at propagation distance of  $L$

高斯型脉冲的时间阶次越高,脉冲的平台宽度越宽,脉冲的能量分布越集中,且脉冲前、后沿的斜率越大,光场强度减小所导致的脉冲前、后沿的宽度越小,因此脉冲激光与分子介质仅发生基态线性吸收的时间范围变窄,而发生两步非线性双光子吸收的范围变宽,导致出射脉冲的持续时间变短。图 3(b) 中不同横向距离  $r$  处脉冲光场强度对时间的分布情况表明,随着  $r$  的增大,入射光场的强度减小,非线性反饱和和吸收的强度减弱,因此输出脉冲宽度逐渐增大,脉冲峰值对应的时间点也逐渐右移。图 3(c) 给出了不同时刻  $t$  下,脉冲光场强度随横向距离  $r$  的分布情况,结合图 3(a) 光强分布的  $(r, t)$  二维等值图可以看出,由于在脉冲的前沿 ( $t=30$  ns) 各横向位置处的光强普遍较弱,在各点处主要发生基态的线性吸收,因此出射脉冲仍然是光轴处光强最强;随着入射脉冲的传播 ( $t=32$  ns),与介质发生相互作用的入射脉冲强度逐渐增加,当靠近光轴处的光强足够大时,近轴部分主要发生非线性双光子吸收,使得光场强度急剧下降,但是由于光场强度横向分

布的衰减关系,远离光轴位置的非线性吸收强度要比近轴处的非线性吸收强度弱,因此出射脉冲的峰值强度出现在  $r>0$  的位置;随着时间的推移 ( $t \geq 35$  ns),高强度的脉冲平台主体部分与分子介质发生两步双光子非线性相互作用,通过快速系间交叉将基态粒子转移到最低三重态,使分子三重态发生较强的反饱和吸收,因此脉冲主体及后沿部分均被强烈吸收。

为了研究超高斯脉冲在传播过程中的能量演化和光限幅行为,图 4 给出了  $m=2$  的入射超高

斯脉冲的能量透射率  $T(z) = \frac{\int_0^{\infty} \int_0^{\infty} I(t, r, z) r dr dt}{\int_0^{\infty} \int_0^{\infty} I(t, r, 0) r dr dt}$  随传播距离的变化情况(实线),

其中虚线是假设仅存在三重态吸收时的透射率,点虚线是假设仅存在最低单重态吸收时的透射率。可以看出,超高斯型脉冲在  $C_{60}$  分子介质中传播时的能量透射率介于仅存在吸收截面较大的三重态吸收

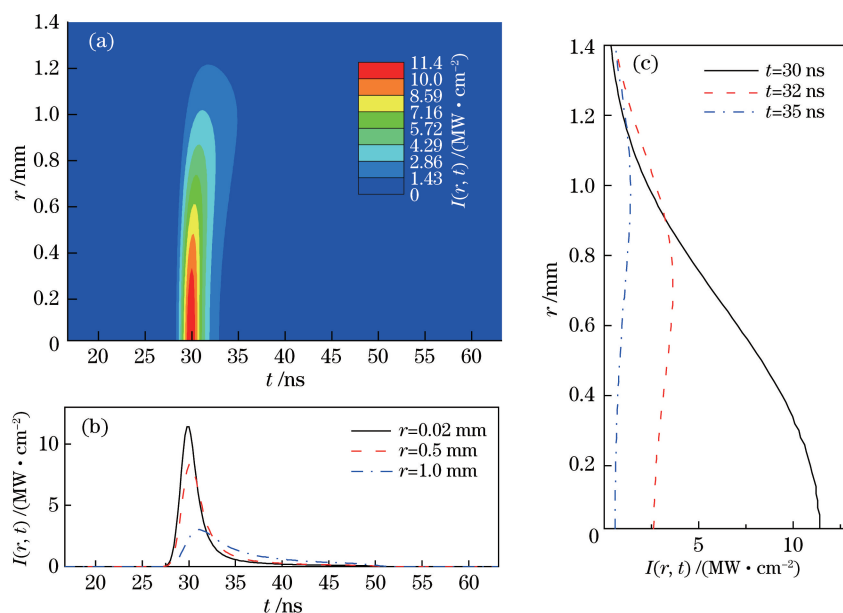


图 3 时间包络阶次  $m=5$  的入射超高斯型脉冲传播到  $C_{60}$  分子介质末端  $L=0.5$  mm 处的光场强度分布。(a) 光场强度的  $(r, t)$  二维等值图; (b) 不同横向距离  $r$  处的光场强度的时间分布; (c) 对应不同时刻  $t$  的光场强度的横向空间分布

Fig. 3 Field intensity distribution of incident hyper-Gaussian pulse with temporal shape order  $m=5$  at propagation distance  $L=0.5$  mm in  $C_{60}$  molecular medium. (a)  $(r, t)$  contour plot of field intensity distribution; (b) temporal distribution of field intensity at different transverse distance  $r$ ; (c) transverse distribution of field intensity at different time  $t$

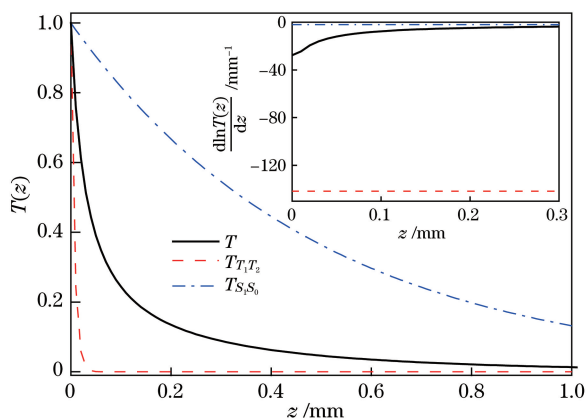


图 4 时间包络阶次  $m=2$  的入射超高斯型脉冲在不同传播距离处的能量透射率曲线

Fig. 4 Energy transmittance of incident hyper-Gaussian pulse with temporal shape order  $m=2$  at different propagation distances

时的透射率和仅存在吸收截面较小的基态吸收时的透射率之间。在传播的初始阶段,由于光场强度较大,主要吸收过程是  $(S_0 \rightarrow S_1) \times (T_1 \rightarrow T_2)$  的两步非线性双光子吸收,脉冲能量迅速减小(图 4),脉冲峰值强度也快速降低[图 2(a)~(c)],表现出很好的光限幅效应。随后,由于脉冲强度的减弱,基态到最低三重态的有效粒子数转移速率降低,介质对光场的非线性吸收减弱,起主要作用的是单重态的线

性吸收,因此脉冲能量(图 4)和光场峰值强度[图 2(c)~(d)]的减小速率随传播距离的增加而减小。图 4 右上角的插图给出了能量透射率对数  $\ln T(z)$  随传播距离  $z$  的变化率  $d \ln T(z)/dz$ ,  $d \ln T(z)/dz$  表示脉冲传播过程中的有效吸收系数。该研究结果同样表明,在脉冲传播的初始阶段,介质的有效吸收系数介于基态吸收系数和三重态吸收系数之间,表现为两步非线性吸收;随着传播距离的进一步增加,介质的有效吸收系数逐渐趋于基态吸收系数,主要表现为单重态的线性吸收。

## 5 结 论

主要研究了纳秒超高斯型激光脉冲在五能级富勒烯  $C_{60}$  分子介质中的非线性传播和反饱和吸收过程。由于体系激发态的粒子数弛豫时间远小于基态到三重态的有效粒子数转移时间和脉冲持续时间,因此采用绝热近似对体系的粒子数速率方程进行简化,然后利用克兰克-尼科尔森差分法求解激光场的傍轴波动方程和粒子数速率方程,并模拟不同时间阶次的纳秒强场超高斯型激光脉冲在  $C_{60}$  分子介质中的传播演化情况。在超高斯型脉冲的传播过程中,低强度的脉冲前沿主要发生基态的线性吸收,而脉冲的主体部分主要发生(单重态  $\rightarrow$

单重态)×(三重态→三重态)的两步非线性双光子吸收,脉冲后沿主要发生三重态的反饱和吸收,因此脉冲的时空包络形状在传播过程中被明显重塑,脉冲持续时间缩短了一个数量级,同时光场峰值强度和脉冲能量减小了一个数量级,表现出很好的光限幅效应;而且输入超高斯型脉冲的时间阶次越大,在传播过程中脉冲被吸收得越厉害,出射脉冲的宽度就越小。

## 参 考 文 献

- [1] Mourou G A, Tajima T, Bulanov S V. Optics in the relativistic regime[J]. *Reviews of Modern Physics*, 2006, 78(2): 309-371.
- [2] Li Q Y. Damage effects of vehicles irradiated by intense lasers[M]. Beijing: China Astronautic Publishing House, 2012.  
李清源. 强激光对飞行器的毁伤效应[M]. 北京: 中国宇航出版社, 2012.
- [3] He G S, Tan L S, Zheng Q D, *et al.* Multiphoton absorbing materials: molecular designs, characterizations, and applications[J]. *Chemical Reviews*, 2008, 108(4): 1245-1330.
- [4] Liu J C, Guo F, Zhao Y N, *et al.* Optical power limiting of ultrashort hyper-Gaussian pulses in cascade three-level system[J]. *Chinese Physics B*, 2018, 27(10): 104209.
- [5] Liu J C, Guo F, Zhao Y N, *et al.* Time-frequency analysis of ultrafast dynamics in cascade three-level system driven by hyper-Gaussian pulses[J]. *Optics Communications*, 2019, 438: 25-33.
- [6] Vella J H, Goldsmith J H, Browning A T, *et al.* Experimental realization of a reflective optical limiter[J]. *Physical Review Applied*, 2016, 5(6): 064010.
- [7] Yadav R K, Aneesh J, Sharma R, *et al.* Designing hybrids of graphene oxide and gold nanoparticles for nonlinear optical response[J]. *Physical Review Applied*, 2018, 9(4): 044043.
- [8] Lim G K, Chen Z L, Clark J, *et al.* Giant broadband nonlinear optical absorption response in dispersed graphene single sheets[J]. *Nature Photonics*, 2011, 5(9): 554-560.
- [9] Boyd R W. Nonlinear optics[M]. Massachusetts: Academic Press, 2010: 16.
- [10] Sun Y P, Riggs J E. Organic and inorganic optical limiting materials. From fullerenes to nanoparticles[J]. *International Reviews in Physical Chemistry*, 1999, 18(1): 43-90.
- [11] Liu J C, Wang C K, Gel'mukhanov F. Dynamics of multilevel molecules and pulse propagation beyond rotating wave approximation near two-photon resonance[J]. *Physical Review A*, 2007, 76(4): 043422.
- [12] Chen Y X, Liu J H, Huang M J. Study on the spectral properties and optical limiting performance of a new fluorene derivative[J]. *Acta Optica Sinica*, 2012, 32(2): 0216002.  
陈玉霞, 刘军辉, 黄明举. 一种新型茈类衍生物的光谱及光限幅性能分析[J]. *光学学报*, 2012, 32(2): 0216002.
- [13] Song H L, Yan L H, Si J H, *et al.* Optical limiter for ultrashort laser pulses based on ultrafast optical Kerr effect[J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2015, 42(2): 0217002.  
宋洪磊, 闫理贺, 司金海, 等. 基于超快光克尔效应的超短脉冲光限幅器[J]. *中国激光*, 2015, 42(2): 0217002.
- [14] Liu J C, Wang C K, Gel'mukhanov F. Optical limiting of short laser pulses[J]. *Physical Review A*, 2007, 76(5): 053804.
- [15] Cocchi C, Prezzi D, Ruini A, *et al.* Ab initio simulation of optical limiting: the case of metal-free phthalocyanine[J]. *Physical Review Letters*, 2014, 112(19): 198303.
- [16] Cho B, Cho M, Kim M, *et al.* Observation of reverse saturable absorption of an X-ray laser[J]. *Physical Review Letters*, 2017, 119(7): 075002.
- [17] Gao Y C, Zhang X R, Li Y L, *et al.* Saturable absorption and reverse saturable absorption in platinum nanoparticles[J]. *Optics Communications*, 2005, 251(4/5/6): 429-433.
- [18] Liu J C, Zhang Y Q, Chen L. Coherent control of nondegenerate two-photon absorption by femtosecond laser pulses[J]. *Journal of Modern Optics*, 2014, 61(10): 781-786.
- [19] Liu J C, Chen L, Zhang Y Q. Identification of strong one-step two-photon absorption in a cascade three-level system[J]. *Journal of Physics: Conference Series*, 2014, 488(3): 032052.
- [20] Gel'mukhanov F, Baev A, Macák P, *et al.* Dynamics of two-photon absorption by molecules and solutions[J]. *Journal of the Optical Society of America B*, 2002, 19(5): 937-945.
- [21] Tutt L W, Kost A. Optical limiting performance of C<sub>60</sub> and C<sub>70</sub> solutions[J]. *Nature*, 1992, 356(6366): 225-226.
- [22] Ganeev R A, Rysnyansky A I, Redkorechev V I, *et al.* Variations of nonlinear optical characteristics of C<sub>60</sub> thin films at 532 nm[J]. *Optics Communications*, 2003, 225(1/2/3): 131-139.
- [23] Ganeev R A, Boltaev G S, Tugushev R I, *et al.* Low- and high-order nonlinear optical characterization

- of C<sub>60</sub>-containing media [J]. The European Physical Journal D, 2011, 64(1): 109-114.
- [24] Gavriluk S, Liu J C, Kamada K, *et al.* Optical limiting for microsecond pulses [J]. The Journal of Chemical Physics, 2009, 130(5): 054114.
- [25] Sun Y P, Gavriluk S, Liu J C, *et al.* Optical limiting and pulse reshaping of picosecond pulse trains by fullerene C<sub>60</sub> [J]. Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena, 2009, 174(1/2/3): 125-130.
- [26] Hendow S T, Shakir S A. Recursive numerical solution for nonlinear wave propagation in fibers and cylindrically symmetric systems [J]. Applied Optics, 1986, 25(11): 1759-1764.
- [27] Ebbesen T W, Tanigaki K, Kuroshima S. Excited-state properties of C<sub>60</sub> [J]. Chemical Physics Letters, 1991, 181(6): 501-504.