

超短脉冲在共轭有机高聚物中传输的啁啾特性的研究^{*}

赵应桥 朱鹤元 刘建华 孙迭麓 李富铭

(复旦大学三束材料改性国家重点联合实验室, 物理系, 上海 200433)

(1997 年 3 月 17 日收到)

采用理论数值分析的方法, 研究了较大谱宽的飞秒激光脉冲在较大的非线性系数和非线性色散的有机高聚物中, 由于非线性色散而导致其啁啾特性的变化, 并进而从脉冲的啁啾特性上, 解释了光谱的有效展宽, 以及脉冲的自频移等脉冲在光谱上的变化.

PACC: 4265; 6140K

1 引 言

共轭有机高聚物由于其较大的非线性系数和较快的非线性响应时间, 而成为光通信、光计算、光信息处理等领域里极具竞争力的非线性材料^[1], 故近些年来对其非线性效应的研究逐渐代替对其导电性的研究, 而成为人们研究的新热点^[2]. 在这些应用中, 主要是利用介质依赖于光强的非线性折射率, 亦即三阶非线性效应, 而曾经大量应用于非线性过程中的无机晶体材料所具有的三阶非线性系数远远不能满足这种需要, 目前只有共轭有机高聚物和无机半导体材料能够使许多利用三阶非线性效应的全光器件成为现实. 而与无机半导体材料相比, 共轭有机高聚物在材料的廉价性以及分子水平上的可操作性上又具有较为突出的优越性.

共轭有机高聚物的三阶非线性系数可以比一般的石英等无机晶体高几个数量级, 导致其较大的三阶非线性系数的原因是其所具有的共轭 π 电子^[2]. 在具有较大的三阶非线性系数的同时, 与石英等无机晶体相比, 其非线性相应时间一般也大几十倍. 亦即在光与物质的相互作用中, 介质对光场的响应不能如同在石英介质中那样简单地考虑成瞬态响应, 而必须考虑其延迟效应, 即在一时刻的介质对光的响应, 既要考虑当前时刻的光场, 又要考虑以前时刻的光场的响应, 反映在频谱上即是其非线性响应对频谱有较大的依赖性, 从而具有较大的非线性色散效应.

非线性色散效应即非线性响应时间对光信息的处理速度以及飞秒激光的传输、孤子的形成等具有重要的作用. 我们对有机高聚物聚苯基喹恶啉(简称 PPQ)、聚(2,5-二丁氧基)苯撑(简称 PPP)等的三阶非线性系数以及非线性响应时间即非线性色散进行了实验

^{*} 国家自然科学基金部分资助的课题.

研究工作^[3,4].

自相位调制效应是超短脉冲激光的产生、孤子脉冲的产生以及超连续谱的产生的重要机制^[5].其主要的作用是能够使光脉冲产生新的光谱成分,即通过使光脉冲产生啁啾而使光脉冲的光谱展宽,获得具有较宽光谱的激光脉冲与获得具有较窄的时间光脉冲同样具有重要的意义.一般在瞬态情况下,自相位调制产生的频率啁啾是对称的,使光脉冲在沿中心波长的两个相反方向上,增加的频率成分相同,整体的频谱对称展宽.本文分析了在非瞬态情况下的自相位调制效应,在频域上非线性响应时间可以等效为非线性色散效应,即不同频率成分的非线性效应不同.在此基础上,说明了此时的自相位调制会导致脉冲产生非对称的非线性啁啾,进而在啁啾特性的基础上,解释了非对称的非线性啁啾导致频谱的非对称展宽,这样便导致了光脉冲的中心波长的移动,即自频移.同时三阶非线性效应的频率依赖性即非线性色散还导致了脉冲光谱有效加宽的降低.

2 理论及结果分析

2.1 包含非线性色散作用的非线性薛定谔方程

描述光与物质相互作用中介质对光场响应的一个十分重要的宏观量就是介质的折射率的变化,对于三阶非线性光学效应,最重要的作用是使非线性介质产生了依赖于光强的非线性折射率变化,它是许多重要应用的基础.对于飞秒光脉冲在介质中传输与介质的相互作用,只要有了依赖于光强的非线性折射率的变化 Δn ,即可用下述的包含非线性色散作用的非线性薛定谔方程(简称 NLS)来描述光脉冲的传输^[5]:

$$\frac{\partial u}{\partial \xi} + \Gamma u + \text{sgn}(\beta_2) \frac{i}{2} \frac{\partial^2 u}{\partial \tau^2} - \delta \frac{\partial^3 u}{\partial \tau^3} = \frac{i}{\tau_R} \left\{ u \Delta n + i s \frac{\partial}{\partial \tau} [u \Delta n(\tau, \tau_R)] \right\}, \quad (1)$$

其中 u 为光脉冲的归一化复振幅,其他参数的定义如下:

$$\xi = |\beta_2| z T_0^2, \quad \tau = (t - z/v_g)/T_0, \quad \delta = \beta_3/6|\beta_2|T_0,$$

$$s = 2/\omega_0 T_0, \quad \tau_R = t_R/T_0, \quad \Gamma = \alpha L_D/2,$$

$$L_D = T_0^2/|\beta_2|, \quad \text{sgn}(\beta_2) = \begin{cases} 1 & \beta_2 > 0, \\ -1 & \beta_2 < 0, \end{cases}$$

z 为脉冲在介质中的传输距离, 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 为脉冲的中心频率, 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, L_D 为色散长度, t_R 为非线性响应时间,非线性折射率系数 n_2 包含在定义的归一化复振幅中: $u = [\gamma T_0^2/|\beta_2|]^{1/2} A$, A 为脉冲包络的复振幅, $\gamma = n_2 \omega_0 / c A_{\text{eff}}$, A_{eff} 为光斑的有效面积.

2.2 非线性折射率的变化及其导致的非对称非线性啁啾

瞬态情况下,介质在一时刻对光脉冲的响应仅由此时刻的光脉冲的光场所决定.对于非瞬态情况下,即若考虑非线性响应时间,可以引入一个指数型的衰减因子,将非线性折

射率 $\Delta n(t)$ 处理成光场和衰减函数的卷积, 也就是将任一时刻的介质的非线性响应都处理成积分累计的形式, 某一时刻的介质的非线性响应, 由当前时刻的光场以及以前时刻的光场作用的一种累计效应. 考虑到衰减的效应, 越远离当前时刻, 其累计的效应越小, 这样 $\Delta n(t)$ 可表示为

$$\Delta n(\tau, \tau_R) \equiv \int_0^\infty d\tau' \exp(-\tau'/\tau_R) |u(\tau - \tau')|^2, \quad (2)$$

$\Delta n(t)$ 所产生的自相位调制效应可表示为

$$\hat{N} \equiv i/\tau_R \Delta n(\tau, \tau_R). \quad (3)$$

对于一般的有机聚合物, 其非线性响应时间在 100 fs 左右. 我们在文献[3]中由于受到所用超短脉冲激光器输出脉冲宽度的影响, 只能说明我们所研究的 PPQ 有机聚合物材料, 其非线性响应时间短于激光脉冲的宽度 (35 ps). 本文取典型的响应时间 200 fs, 并使用典型的双曲正割形脉冲, 对上式进行了数值计算. 图 1 给出非线性响应时间为 200 fs 的

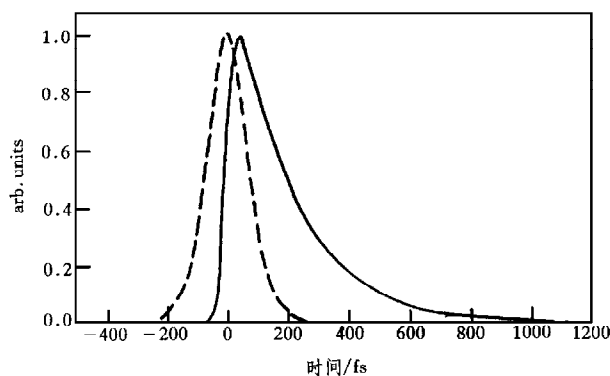


图 1 200 fs 非线性响应时间下非线性折射率随时间的变化曲线

----为泵浦脉冲; ——为非线性折射率变化

$\Delta n(t)$ 的变化曲线 (虚线表示我们采用的双曲正割形脉冲). 从图 1 可看出, $\Delta n(t)$ 的变化与飞秒激光脉冲的变化不同步, 由于以前时刻光场作用的累计效应, 其变化的最大值并不与脉冲的峰值重合, 而稍滞后. 另外, $\Delta n(t)$ 响应也不是随脉冲的过去很快地降为零, 而是拖了一个较长的尾巴. 总之, 整个 $\Delta n(t)$ 响应曲线不再是瞬态情况下与激发的激光脉冲同步对称的变化曲线, 而是一个快速上升伴随着缓慢下降的变化过程, 其不同步的响应曲线主要是因为当激发介质的飞秒脉冲达到最大值时, 由于以前时刻的光场的累计效应, 激发的非线性响应并没有同时达到最大值, 而是在后面的一定时刻才能达到最大的非线性响应, 其拖得较长的尾巴也是由于以前光场的累计效应不随激发场的消失而马上消失. 这样的 $\Delta n(t)$ 响应曲线必然导致非对称的非线性啁啾变化.

图 2 给出这样的 $\Delta n(t)$ 使得脉冲增加的新的啁啾成分. 可以清晰地看出, 此时所导致的啁啾变化不再是瞬态情况下的典型的对称非线性啁啾, 即其正负啁啾量的变化的绝对值不同. 为了反映不同的非线性响应时间对脉冲啁啾变化的影响, 我们取从 50—200 fs 对于有机聚合物较为典型的非线性响应时间. 图 2 给出不同的非线性响应时间导致的脉

冲的啁啾变化. 可从图 2 的相对值中见到, 不同的非线性响应时间导致的正负啁啾量的绝对值不同, 非线性响应时间越大, 其导致的正负啁啾量的绝对值越小, 脉冲产生新的啁啾相当于增加了新的频谱成分, 进而相当于使脉冲的频谱展宽, 所以我们认为非线性响应时间可以使脉冲频谱的有效展宽减小. 从非线性色散上可以进行更为直接的解释, 非线性响应时间在频域里对应于非线性色散, 即不同频谱其非线性效应不同. 对于超短脉冲, 其脉冲本身就具有较宽的频谱, 这样不同的频谱得到的非线性效应不同, 非线性色散效应越显著, 便会导致有效的光谱展宽减小.

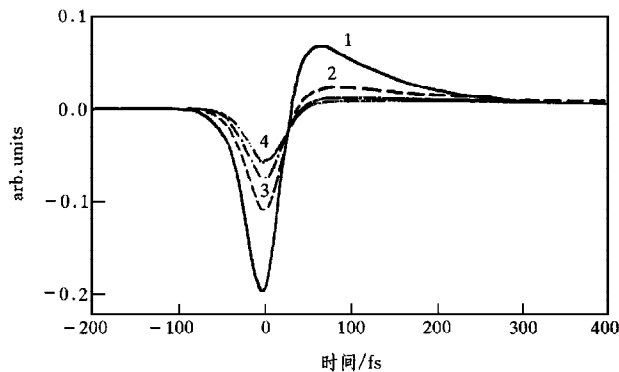


图 2 不同非线性响应时间下非对称的非线性啁啾的变化曲线 曲线 1 为 50 fs; 曲线 2 为 100 fs; 曲线 3 为 150 fs; 曲线 4 为 200 fs

从啁啾的变化特性, 还可对脉冲的自频移效应进行解释. 一般认为非线性色散会使脉冲在频谱里产生自频移, 且发生在长波方向, 即称为红移. 从物理学上可以简单地解释为由于脉冲在传输过程中不同的频谱成分获得的增益不同, 长波方向获得的增益大而使脉冲发生长波方向的自频移. 我们在这里从啁啾特性上可以给出较好的解释, 在瞬态情况下的自相位调制效应, 产生的啁啾其正负量的绝对值相同, 此时可以认为在光谱变化上, 导致的脉冲在光谱的长波和短波上增加相同的光谱成分, 这样脉冲在频谱上只发生光谱展宽, 而不会发生光谱的整体移动. 但是如前所述, 在具有非线性色散情况下, 自相位调制导致的啁啾是非对称的非线性啁啾, 它使脉冲在长波和短波方向上获得不同的新的频谱成分, 由于正的啁啾量小于负的啁啾量, 从而导致脉冲在长波方向上获得的频谱成分大于短波方向上获得的频谱成分, 使脉冲在频谱上发生红移.

我们可以定性地将正负啁啾量之差简单地作为红移量大小的一种量度, 当然精确地说, 最后的频移量应与整个啁啾变化曲线相对应, 从中可以看出红移量随非线性响应时间的变化趋势. 图 3 给出正负啁啾量之差随非线性响应时间的变化曲线. 这时为了将有机高聚物中的结果与一般的非线性无机晶体的结果进行比较, 选了从几个飞秒到上百个飞秒的较宽的非线性响应时间范围进行了计算. 从图 3 可以发现, 此时的正负啁啾量之差并不简单地随非线性响应时间的增大而单调地增大, 先是增大, 但是当非线性响应时间增大到一定值时, 反而下降. 这说明红移量也不随非线性响应时间的变化单调地变化, 是一个先增大后减小的过程. 一般认为红移量随非线性响应时间的变化是单调的, 而且几乎是线性

的.但是这种结论是在具有较快的非线性响应时间下得到的,它只对应图 3 中曲线的开始部分,在石英等无机晶体中^[5]的情况大致就对应于这一段的情况,其非线性响应时间一般都在几个飞秒量级,此时可以看作是非线性色散效应忽略的情形.但是在 PPQ 等具有较大非线性系数的有机高聚物中,其非线性色散效应相对较大,同时对于飞秒激光脉冲而言,其谱宽较宽,故非线性色散的作用就更显著,它使有效的光谱展宽量下降,亦即使增加的啁啾量下降,整个啁啾的变化量变小,最后使正负啁啾的绝对值之差也下降,进而使脉冲在频谱上的自频移反而下降.

以上仅仅是利用对(2)式的分析给出啁啾的变化规律,对自频移进行的解释.图 4 给出选取不同的非线性色散对(1)式精确求解而得到最后的脉冲频谱.在进行数值模拟时,

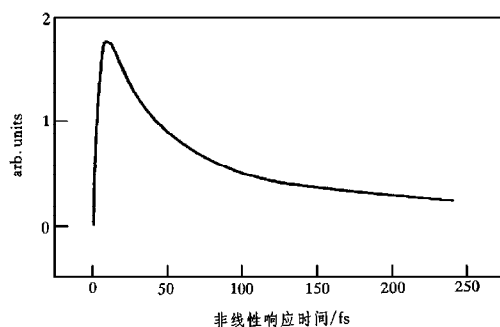


图 3 非对称非线性啁啾的正负部分绝对值的最大值之差随非线性响应时间的变化曲线

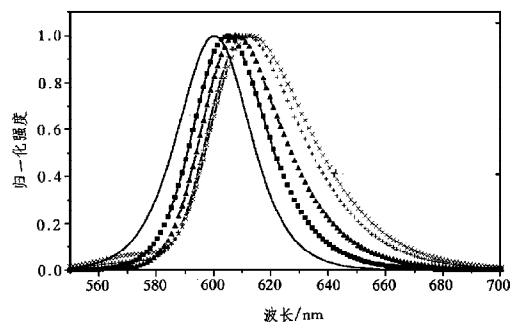


图 4 非线性响应时间不同导致最后不同的脉冲自频移 —— 为初始时刻; × 为 50 fs; + 为 60 fs; ▲ 为 100 fs; ■ 为 200 fs

基本上以我们所合成的 PPQ 有机聚合物为基础,选取: $\beta_2 = 2 \times 10^{-24} \text{ s}^2/\text{m}$, $\beta_3 = 3 \times 10^{-39} \text{ s}^3/\text{m}$, $\alpha = 14 \text{ dB/cm}$, 激光脉冲取双曲正割形脉冲,其峰值功率为 220 W, 光斑半径为 $3 \mu\text{m}$, 脉冲半宽度为 80 fs, 中心波长为 600 nm, n_2 为 $7 \times 10^{-16} \text{ m}^2/\text{W}$, 非线性介质的厚度为 200 μm . 为了反映非线性响应时间的影响,我们同样选取了对于一般的有机聚合物极为典型的非线性响应时间 50—200 fs 进行数值拟合.可以见到,脉冲在频谱上的自频移基本上随非线性响应时间的增大而下降,这与在几个飞秒范围内无机晶体的变化不同^[5],与图 3 的结果一致,解释了正是因为整个啁啾量由于非线性色散的增大而变小导致正负啁啾的绝对值之差的下降,并说明了当非线性响应时间从几个飞秒的无机晶体的情况变到 100 fs 左右的有机聚合物时,脉冲在频谱上的自频移的非单调性,而有机聚合物落在下降区.

3 结 论

利用包含非线性色散作用的 NLS 方程,从理论上分析了非线性色散导致的超快脉冲在共轭有机高聚物中传输的啁啾变化特性,分析了啁啾变化的不对称性随不同非线性色散量的变化.在分析脉冲的啁啾变化特性的基础上,分析了脉冲的自频移的特性,从啁啾

变化特性上解释了自频移随非线性色散变化的非单调性.

- [1] R. A. Fisher, *Optical Phase Conjugation* (Academic Press, New York, 1983).
- [2] J. L. Bredas, C. Adant, P. Tackx and A. Persoons, *Chem. Rev.*, **94**(1994), 243.
- [3] Jun Yan, Jiao-yao Wu, He-yuan Zhu, Xiao-tian Zhang, Die-chi Sun, Fu-ming Li, Meng Sun, *Opt. Commun.*, **116** (1995), 425.
- [4] Jun Yan, Jian-yao Wu, He-yuan Zhu, Xiao-tian Zhang, Die-chi Sun, Fu-ming Li, Meng Sun, *Opt. Lett.*, **20** (1995), 255.
- [5] G. P. Agrawal, *Nonlinear Fiber Optics* (Academic Press, New York, 1989).

STUDY OF CHIRP CHARACTERISTICS OF FEMTOSECOND PULSE PROPAGATION IN CONJUGATED POLYMER

ZHAO YING-QIAO ZHU HE-YUAN LIU JIAN-HUA SUN DIE-CHI LI FU-MING

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

(Received 17 March 1997)

ABSTRACT

We study the chirp characteristics of femtosecond laser pulse propagating in conjugated polymer with larger nonlinear dispersion effect by means of theoretical and simulated methods. From the chirp characteristics of femtosecond laser pulse, the explanation for effective spectrum broadening and self-frequency-shift is given.

PACC: 4265; 6140K