

非线性光吸收研究的新进展¹⁾

李淳飞 张雷

(哈尔滨工业大学物理系, 哈尔滨 150006)

系统介绍了光吸收的几种非线性效应: 饱和吸收、反饱和吸收和饱和吸收-反饱和吸收综合效应。讨论了用于解释这些效应的各种物理模型, 分析了介质在不同脉宽的激光脉冲作用下所产生的不同光吸收机制, 反饱和吸收稳态和动态特性, 并介绍了非线性光吸收的可能应用。文中所涉及的有关反饱和吸收的内容是作者所领导的研究组近年来的研究成果。

关键词 非线性吸收, 饱和吸收, 反饱和吸收

Abstract

Several nonlinear effects of optical absorption, such as saturable absorption, reverse saturable absorption and the combination of saturable absorption and reverse saturable absorption, are described, including the physical models for their interpretation. The different mechanisms of nonlinear absorption under the action of laser pulses with different pulse-width as well as the steady-state and dynamic characteristics of reverse saturable absorption are analyzed. Possible applications of nonlinear absorption are also mentioned.

Key words nonlinear absorption, saturable absorption, reverse saturable absorption

光吸收是光与物质相互作用的一种最基本的方式。所有光辐射、光散射和光致折射率变化过程都与光吸收有密切的关系。当一束单色光通过厚度为 L 的介质, 其透射率为 $T = \exp(-\alpha L)$, α 是吸收系数。在弱光作用下, $\alpha = \alpha_0$ 为一常数, 称为线性吸收。 α_0 为线性吸收系数。非线性吸收则是在强光作用下, 吸收系数随光强变化的现象。本文主要讨论激光入射介质时所引起的各种非线性光吸收效应。

一、饱和吸收

饱和吸收是随光强的增加吸收系数减小(或透射率增加)的效应。饱和吸收主要由基态能级的非线性吸收所引起。

对一个二能级系统(图1), 例如半导体的物理

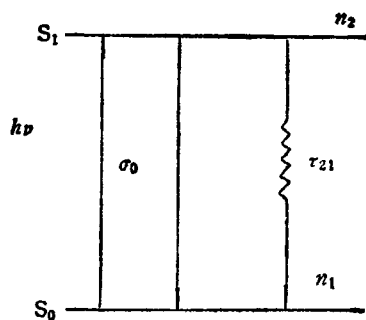


图1 二能级系统的能级结构

导带和价带构成的系统, 在光强为 I 和频率为 ν 的激光作用下, 基态 S_0 的粒子跃迁至激发态 S_1 , 吸收截面为 σ_0 , 然后再以自发辐射或无辐射弛豫(弛豫时间为 τ_{21})的方式回到基态。设基态和激发态的粒子数密度分别为 n_1 和 n_2 , n_2

1) 国家自然科学基金和国家教委博士点基金资助项目。

随时间的变化由以下速率方程描述:

$$\frac{\partial n_2}{\partial t} = \frac{\sigma_0}{h\nu} I(n_1 - n_2) - \frac{n_2}{\tau_{21}} \quad (1)$$

总粒子数密度为 $N = n_1 + n_2$. 在激光脉冲宽度大于激发态寿命的稳态条件下, 方程中 $\partial/\partial t = 0$, 则

$$\Delta n = n_1 - n_2 = \frac{N}{1 + \frac{I}{I_c}} \quad (2)$$

因 $\alpha = \Delta n \sigma_0$, $\alpha_0 = N \sigma_0$, 则吸收系数为

$$\alpha = \frac{\alpha_0}{1 + \frac{I}{I_c}} \quad (3)$$

其中 $I_c = \frac{h\nu}{2\sigma_0\tau_{21}}$ 为饱和光强. 由(3)式可见, 当光强增加时, 吸收系数将减小, 直至趋于一个接近零的饱和值. 这就是饱和吸收特性. 图2示出一个 GaAs/GaAlAs 量子阱材料的激子饱和吸收特性^[1]. 由(2)式可见, 当 $I \rightarrow \infty$ 时, $\Delta n = 0$, 即 $n_1 \approx n_2$, 就是说在强光作用下, $S_0 \rightarrow S_1$ 的粒子数与 $S_1 \rightarrow S_0$ 的粒子数达到平衡. 这就是二能级饱和吸收达到饱和的实质.

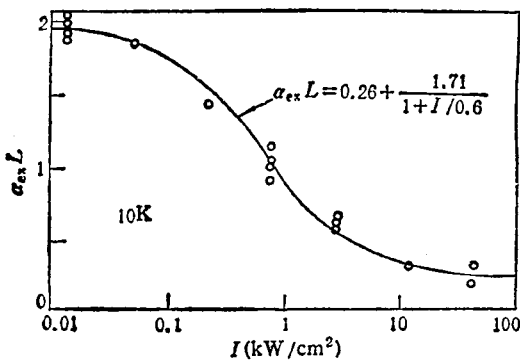


图2 GaAs/GaAlAs 量子阱材料的激子饱和吸收特性

在染料分子中, 存在着单重态和三重态两个激发态能级, 需要考虑三能级模型(图3). 基态能级 S_0 的粒子吸收光子跃迁至单态激发态能级 S_1 , 再以很大的几率(弛豫时间 τ_{23}) 跃迁到三重态激发态能级 T_1 , 少量粒子从单重激发态能级回到基态能级(弛豫时间 τ_{21}). 由于从 T_1 回到 S_0 的几率极小(弛豫时间 τ_{31}), 在强光作用下, 大量粒子积累在 T_1 上. 由此, 两激

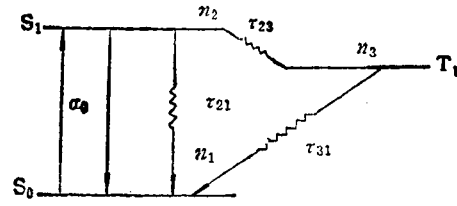


图3 三能级系统能级结构

发态能级的速率方程如下:

$$\left. \begin{aligned} \frac{\partial n_2}{\partial t} &= \frac{\sigma_0}{h\nu} I(n_1 - n_2) - \frac{n_2}{\tau_{21}} - \frac{n_2}{\tau_{23}} \\ \frac{\partial n_3}{\partial t} &= \frac{n_2}{\tau_{23}} - \frac{n_3}{\tau_{31}} \end{aligned} \right\} \quad (4)$$

总粒子数密度为 $N = n_1 + n_2 + n_3$. 在稳态条件下, 可以求得

$$n_1 = \frac{N}{1 + \frac{I}{I_s}}, \quad n_2 \approx 0, \quad n_3 = \frac{N}{1 + \frac{I_s}{I}} \quad (5)$$

因为 $\alpha \approx n_1 \sigma_0$, $\alpha_0 = N \sigma_0$, 吸收系数的表达式与(3)式相同. 其中 $I_c \approx \frac{h\nu}{\sigma_0 \tau_{31}}$. 也就是三重态模型与二能级模型的饱和吸收服从相同的规律. 从(5)式可见, 当 $I \rightarrow \infty$, $n_1 \rightarrow 0$, 而 $n_3 \rightarrow N$, 即在强光作用下, 大部分粒子从基态能级转移到三重态的激发态能级. 这是三能级饱和吸收达到饱和的实质.

饱和吸收现象主要发生在线性吸收谱的峰值处(共振吸收). 因为该处的吸收系数有很强的光强依赖性. 60年代, 饱和吸收被广泛应用于激光脉冲的压缩(调Q和锁模)^[2]. 70年代以来, 所研究的大多数光学双稳器件都是基于由饱和吸收引起的非线性色散效应^[1].

二、反饱和吸收的物理模型

反饱和吸收是随光强的增加吸收系数增大(或透射率减小)的效应. 反饱和吸收主要由激发态能级的非线性吸收所引起.

许多具有中心对称的有机大分子的能级结构可以用一个五能级模型来描述(图4)^[3]. 例如具有二维 π 电子机制的金属酞菁化合物(MPc)和具有三维 π 电子机制的 C_{60} 适用于这

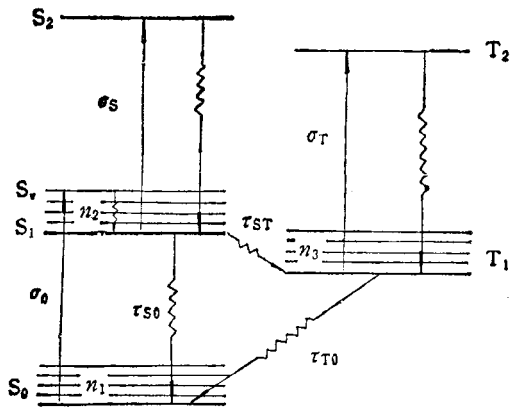


图4 有机大分子的五能级模型

种模型。在每个电子能级附近存在着许多振转子能级,这样就提供了一种可能性,使基态能级和单态或三重态的激发态能级同时吸收同频率的光子。如果激发态的吸收截面大于基态的吸收截面;即 $\sigma_s > \sigma_0$ 或 $\sigma_T > \sigma_0$, 就可能实现反饱和和吸收。这种情况在 σ_0 很大的线性吸收峰处不可能做到,但在 σ_0 很小的谷值附近易于发生(即非共振跃迁)。图5给出了MPc和C₆₀的线性吸收谱^[4,5],可以看出,在波长500nm附近,激发态能级的吸收强于基态能级吸收,易于实现反饱和和吸收。

图4描绘了实现反饱和和吸收的具体过程。

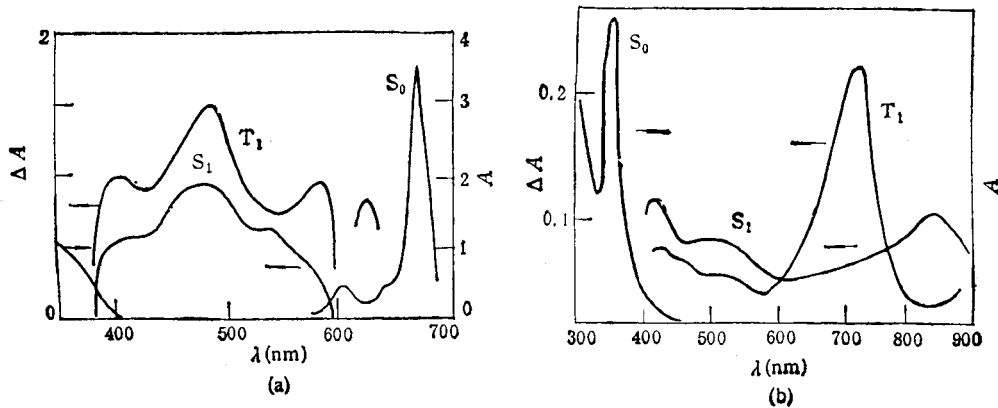


图5

(a) MPc 的线性吸收谱; (b) C₆₀ 的线性吸收谱

在激光的激发下,粒子从基态 S_0 跃迁到第一激发态能级的一个振动能级 S_v 上,由该处迅速弛豫到能级 S_1 上(弛豫时间为 ps 量级)。再从 S_1 以很大几率(弛豫时间对酞菁铜约为 0.15ns,对 C₆₀ 约为 1.2ns),跃迁到三重态第一激发态能级 T_1 。由于从 T_1 回到 S_0 的几率很小,大部分粒子积聚在 T_1 上。在一个脉冲宽度大于 T_1 寿命的 ns 脉冲激光作用下,能级 T_1 上的粒子还参与 $T_1 \rightarrow T_2$ 的受激吸收。在吸收饱和和情况下, T_1 上的粒子数密度 $n_3 \gg n_0$,而且 $\sigma_T > \sigma_0$,致使出现反饱和和吸收。虽然存在着 $T_1 \rightarrow T_2$, $S_1 \rightarrow S_2$ 跃迁,但在 T_2 和 S_2 态的能级寿命极短($\leq ps$),粒子不可能在该能级上积累,故不考虑这两个高能级的粒子数密度变化。只需考虑能级 S_0 , S_1 和 T_1 态的粒子数密度 n_1, n_2 和 n_3 随时间

的变化,故速率方程与(4)式相同,且有 $N = n_1 + n_2 + n_3$ 。

考虑到介质有厚度,在光传播方向(z)上,吸收系数随光强而变,需建立一个光传播方程:

$$\frac{\partial I}{\partial z} = -\alpha I, \quad (6)$$

其中 $\alpha = n_1\sigma_0 + n_2\sigma_s + n_3\sigma_T$ 。也就是说总吸收系数 α 是由能级 S_0, S_1 和 T_1 的吸收系数之和组成。在(4)式和(6)式中, I 为时间 t 和坐标 z 的函数,可以写成 $I = I_0(z)f(t)$, I_0 为脉冲峰值光强, $f(t)$ 为脉冲的时间波形。将(4)式和(6)式联立,用计算机进行数值求解,可以得到 $n_1(t), n_2(t), n_3(t)$ 和 $I(t, z)$ 在任一时刻和任一位置的解。

三、反饱和吸收的稳态和动态特性

当入射光脉冲的宽度远大于所有能级的寿命时(包括 $\tau_L > \tau_{31}$), 可以把非线性光吸收问题当作稳态问题处理, 即在(4)式中 $\partial/\partial t = 0$ 成立。在 $\tau_{31} \gg \tau_{23}$ 的假定下, 由(4)式和(6)式可求得^[6]

$$\alpha = \alpha_0 \left(\frac{1 + KI'}{1 + I'} \right), \quad (7)$$

其中 $I' = I/I_s$, $K = \sigma_T/\sigma_s$, $\alpha_0 = \sigma_0 N$, $I_s \approx h\nu/\sigma_0 \tau_{31}$ 。 α 和相对光强 I' 的关系见图 6。当 $K < 1$, 即 $\sigma_T < \sigma_0$ 时为饱和吸收; 而当 $K > 1$, 即 $\sigma_T > \sigma_0$ 时为反饱和吸收。

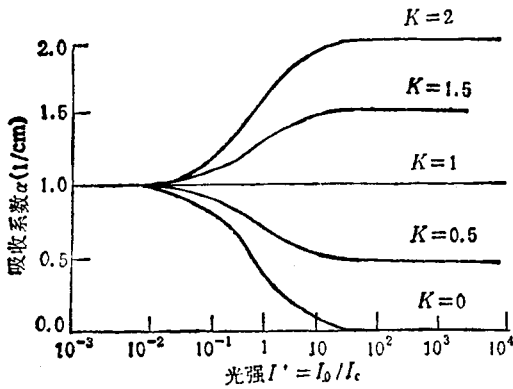


图 6 吸收系数与相对光强间的函数关系

还可以得到非线性透射率 $T = \exp(-\alpha L)$ 与相对光强 I_0 间关系的解析表达式^[6]:

$$\ln\left(\frac{T}{T_0}\right) = \left(1 - \frac{1}{K}\right) \ln\left(\frac{1 + KT I_0'}{1 + KI_0'}\right), \quad (8)$$

其中 $I_0' = I_0/I_s$, I_0 为脉冲峰值光强。

若取线性透射率 $T_0 = 0.60$, $I_s = 2 \times 10^7 \text{ W/cm}^2$, 对 $K = 2, 4, 10, 14$ 我们得到一组 $T-I_0'$ 曲线, 如图 7 所示。可以看出, K 值越大, 反饱和和吸收效应越强。反之为实现强反饱和吸收, 必须选用 $K = \sigma_T/\sigma_0$ 大的材料和采用对应于 K 大的激光波长。

我们曾用波长为 532nm, 脉宽为 15ns 的调 Q 倍频 YAG 激光入射酞菁铜样品 ($\tau_{31} = 10\text{ns}$, $\tau_{23} = 0.15\text{ns}$)。证明了反饱和和吸收稳态理论近

似符合实验结果(见图 8)^[7]。

当入射脉冲的宽度小于某些能级寿命时(如 $\tau_L < \tau_{31}$), 必须研究非线性光吸收的动态行为(即 $\partial/\partial t \neq 0$)。我们以 C_{60} 的甲苯溶液为例($\tau_{31} = 280\mu\text{s}$, $\tau_{23} = 1.2\text{ns}$), 用 532nm YAG 激光作光源, 并假设脉冲波形为一时间高斯函数: $I(t, z) = I_0(z) \exp[-C(t/\tau_L)^2]$, 在激光脉宽为 8ns 和 21ps 两种情况下, 根据(4)式和(6)式, 用数值计算方法算得反饱和吸收特性, 即能量透射率 T 相对入射能流密度 F (光强在脉冲作用时间内的积分) 的关系曲线, 见图 9。实验结果与理论曲线比较, 在 F 小于 1 J/cm^2 时, 理论与实验完全一致。但在 F 大于 1 J/cm^2 时, 其他效应(如热效应、散射效应、双光子效应、甚至介质或容器被破坏等)造成两者不符^[8]。

理论和实验证明, 当激光脉宽大于单重态-

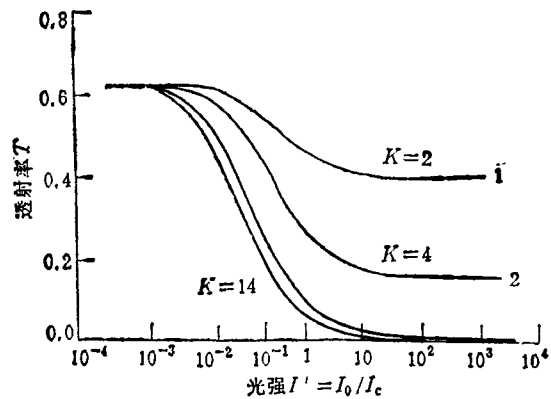


图 7 透射率 T 与相对光强 I' 间的函数关系

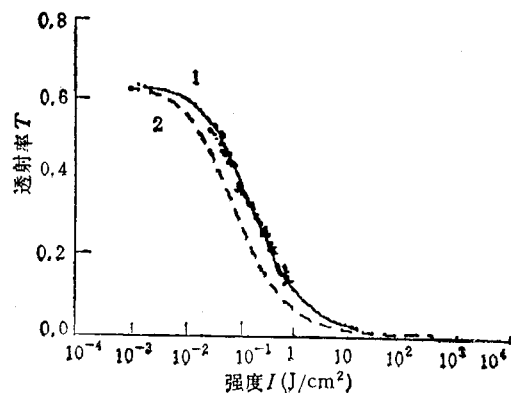


图 8 CuPc 的反饱和吸收特性动态模拟(1), 稳态模拟(2)与实验(点)的比较

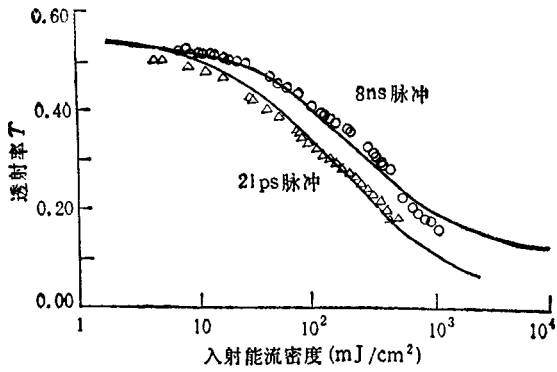


图9 ns/ps 脉冲激光入射 C₆₀ 甲苯溶液能量透射率与入射能流密度间的关系

三重态系际弛豫时间 ($\tau_L > \tau_{23}$) 时, 如在 ns 光脉冲作用下, 三重态激发态的吸收起主导作用. 但对脉冲宽度小于系际弛豫时间 ($\tau_L < \tau_{23}$) 时, 如在 ps 光脉冲作用下, 单重态激发态的吸收起主导作用.

反饱和吸收可用于激光防护, 制成快速限幅器(或高速光阀), 使眼睛或探测器免受短脉冲激光的损伤. 目前世界各国都在竞相研究这种限幅器^[9]. 反饱和吸收还可以用作吸收型光开关或吸收型光双稳器件. 过去的光双稳开关大部分是色散型, 必须用 FP 谐振腔. 这种全吸收型器件无须反射镜, 并且具有快速响应、低损耗等优点.

四、反饱和吸收向饱和吸收的转化

以上的讨论没有考虑更高激发态的贡献, 这是因为高激发态的能级寿命比较短, 约等于或小于 ps 量级. 当采用 ps 短脉冲激光入射介质时, 在某些情况下必须考虑 S₂ 能级对光吸收的贡献^[10]. 例如类卟啉镉的单重态第一激发态的能级寿命为 $\tau_{s1} = 100\text{ps}$, 单重态第二激发态的能级寿命为 6.7ps. 我们用波长为 532nm 和脉宽为 21ps 的激光入射样品, 发现在高激发光强下反饱和吸收转变成饱和吸收的现象, 见图 10^[11].

对于这种新现象, 可以用单态四能级模型

物理

来解释(图 11). 因为入射激光脉宽小于系际跃迁时间, 可以不考虑三重态的作用. 拟采用如下速率方程组进行理论模拟:

$$\left. \begin{aligned} \frac{\partial n_2}{\partial t} &= \frac{\sigma_0 I}{h\nu} n_1 - \frac{\sigma_1 I}{h\nu} n_2 - \frac{n_2}{\tau_{21}} + \frac{n_3}{\tau_{32}}, \\ \frac{\partial n_3}{\partial t} &= \frac{\sigma_1 I}{h\nu} n_2 - \frac{n_3}{\tau_{32}}, \\ N &= n_1 + n_2 + n_3, \\ \frac{dI}{dz} &= -(\sigma_0 n_1 + \sigma_1 n_2 + \sigma_2 n_3) I. \end{aligned} \right\} (9)$$

数值计算结果见图 10 的实线, 与实验数据完全相符. 为什么会在高光强下出现饱和吸收现象? 这是因为当入射光能量较小时, 分子主要在 S₁ 上积累, 在达到饱和以前, S₀ 和 S₁ 能级间的跃迁起主要作用, 因为 $\sigma_1 > \sigma_0$, 则表现为反饱和吸收. 当光强增大使之达到饱和时, 基态能级粒子数几乎被抽空, 只需考虑 S₁ 和 S₂ 的贡献

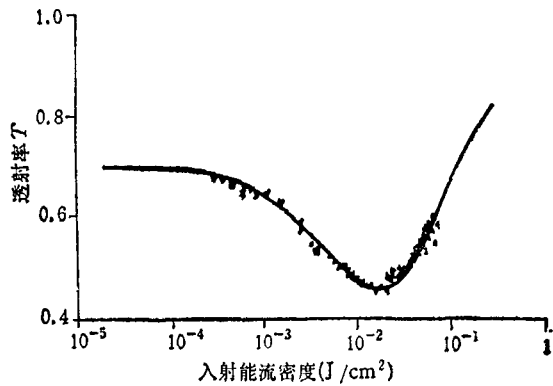


图 10 21ps 激光入射类卟啉镉的非线性吸收特性

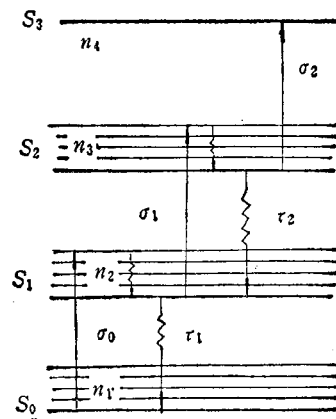


图 11 单态四能级模型

献。因为 $\sigma_2 < \sigma_1$ ，所以出现饱和吸收。

这种饱和吸收-反饱和吸收综合效应可能用作各种光逻辑门，比如用于全光加法器的异或门。

从以上的讨论可以得到以下结论：

(1) 非线性光吸收是吸收系数依赖于光强的现象。若吸收系数随光强的增加而减小，则称为饱和吸收；若吸收系数随光强的增加而增大，则称为反饱和吸收。

(2) 当具有特定波长的激光入射存在大量子能级的分子系统，原则上各能级对该波长激光的非线性吸收都有贡献。每个能级贡献的大小由该能级的吸收截面和能级寿命决定，也与人射激光的脉冲宽度相对能级寿命的大小有关。在长脉冲作用下，光吸收过程可作稳态处理。在脉宽短于某一能级寿命的脉冲激光作用下，光吸收过程只能作动态处理。

(3) 对具有单重态-三重态结构的有机材料来说，各能级对反饱和吸收的贡献是不同的，取决于入射激光脉宽和激发态能级的寿命与吸收截面。在 ns 激光作用下，一般激光脉宽大于系际弛豫时间，三重态第一激发态能级的贡献是主要的。在 ps 激光作用下，一般激光脉宽小于系际弛豫时间，单重态第一激发态能级的贡献是主要的。

(4) 如果激光脉宽短到可与高激发态能级寿命相比，而且激光入射能量密度足够大，比如在 ps 强激光作用下，可能出现饱和吸收和反饱和吸收之间相互转变的效应。对于 $\sigma_1 > \sigma_0$ 且 $\sigma_2 < \sigma_1$ 的介质，可能在较弱光的作用下先出现反饱和吸收，然后在强光的作用下出现饱和吸

收。相反，对 $\sigma_0 > \sigma_1$ 且 $\sigma_2 > \sigma_1$ 的介质，则可能在较弱光的作用下先出现饱和吸收，然后在强光的作用下再出现反饱和吸收。

总之，非线性光吸收的研究具有重要的理论意义和实用价值。对非线性光吸收及其有关的非线性效应的研究，将加深人们对强光与物质相互作用机制的认识，有可能在此基础上开拓一个激发态非线性光学的新领域。同时，应用非线性光吸收的各种新效应，可能研制一批新型的吸收型光子器件，如光开关、光限幅器、光调制器、光逻辑门^[12]，用于未来的光计算、光通信、光信息处理及军事激光技术。

参加本文研究工作的还有王瑞波、杨淼、王惠、宋瑛林、国风云、司金海、王玉晓、杨昆和殷凤田等同志，作者在此表示诚挚的感谢。

- [1] H. M. Gibbs, *Optical Bistability: Controlling Light With Light*, Academic Press, Inc., (1985).
- [2] M. Hercher, W. Chu, and D. L. Stockman, *IEEE J. Q. E.*, **QE-4**, (1968), 954.
- [3] 李淳飞、张雷等, *物理学报*, **42**(1993), 1236.
- [4] H. Ohtani, T. Kobayashi et al., *J. Phys. Chem.*, **88**, (1984), 18.
- [5] T. W. Ebbesen, K. Tanigaki, and S. Kuroshima, *Chem. Phys. Lett.*, **181**, (1991), 501.
- [6] 李淳飞、王惠等, *光学学报*, **13**(1993), 219.
- [7] Chunfei Li, Lei Zhang et al., *Phys. Rev. A*, **49** (1994), 1147.
- [8] F. Henari, J. Callaghan et al., *Chem. Phys. Lett.*, **189**(1992), 144.
- [9] L. W. Tutt and A. Kost, *Nature*, **356**(1992), 225.
- [10] J. Hughes, G. Spruce, B. S. Wherrett et al., *Opt. Comm.*, **100**, (1993), 113.
- [11] Jinhai Si, Miao Yang, Yuxiao Wang et al., *Opt. Commun.*, **109**(1994), 487.
- [12] Chunfei Li, Miao Yang, et al., *Int. J. Opt. Phys.*, **2**, (1993), 551.