

聚甲基丙烯酸甲酯在飞秒激光 作用下的渐变白光效应

王维波^{1,2} 夏元钦² 陈德应² 樊荣伟²

(¹ 哈尔滨师范大学物理与电子工程学院 黑龙江省先进功能材料与激发态重点实验室, 黑龙江 哈尔滨 150025;
² 哈尔滨工业大学光电子所, 黑龙江 哈尔滨 150001)

摘要 研究了飞秒脉冲与聚甲基丙烯酸甲酯(PMMA)相互作用后产生光谱超连续的现象。采用飞秒激光脉, 波长为 800 nm, 频率为 1 kHz, 脉冲能量密度为 10^{12} W/cm² 在 PMMA 中成丝, 产生渐变超连续光谱即从连续白光逐渐变为抽运光。发现当飞秒脉冲在 PMMA 体内在所成丝中会出现渐变, 以及在等离子丝中光场横向的环状结构和出现渐变白光光谱。实验发现, 激光照射时间对成丝影响显著; 飞秒激光脉冲在 PMMA 中的成丝的过程具有光折变特性。

关键词 非线性光学; 渐变白光光丝; 飞秒激光; PMMA

中图分类号 O437 文献标识码 A doi: 10.3788/AOS200929s1.0165

Variable White-Light Filaments Induced by Femtosecond Laser in PMMA

Wang weibo^{1,2} Xia yuanqin² Chen Deying² Fan Rongwei²

(¹ Heilongjiang Key Laboratory for Advanced Functional Materials and Excited State Processes, School of Physics and Electronic Engineering, Harbin Normal University, Harbin, Heilongjiang 150025, China;
² Institute of Opto-Electronics, Harbin Institute of Technology, Harbin, heilongjiang, 150001, China)

Abstract This paper describes super-continuum generation of femtosecond lasers (800 nm, 1kHz, peak intensity 10^{12} W/cm²) with PMMA polymers. The white light filaments changed from super continuum to pumped light spectrum is founded, the circle structures of the variable spectrum are recorded. The effect of interaction time on the filaments is presented. The relationship between the damage threshold of the PMMA and interaction time is investigated. The experimental results show that PMMA has the photorefractive properties in the field of super-continuum generation.

Key words nonlinear optics; variable white-light filaments; femtosecond -laser; PMMA

1 引 言

近年来飞秒激光与透明物质的相互作用引起了人们的广泛关注。因为飞秒激光脉冲在透明介质(固体、液体和气体)中传输(脉冲能量密度大于等于 10^{13} W/cm²)^[1]时,能产生白光超连续谱并产生能远距离传播的稳定光丝,这种白光通道是具有类似激光束特性的高强度和亮度光源,能探测到极高的高空(20 km)^[2~6],而且所产生的从紫外到红外波段的白光光谱成分是飞秒光脉冲可调谐的一种重要手段,同时也是太瓦级宽带雷达光源^[2]。飞秒激光脉冲产生的白光通道在大气远距离痕量污染物监测、战场侦毒等方面具有广阔的应用前景,较常规激光雷达具有许多明显优点^[1]。透明介质聚甲基丙

酸甲酯(PMMA)由于光学性质稳定和具有良好的光学透过率等特点,广泛用于光通讯领域中制造光学纤维和作为固体激光染料的基质用于固体激光染料激光器的研制。由于飞秒激光在光刻领域的应用,尤其是集成光学的发展,在以石英和 PMMA 等为材料的光纤中制造出微型光学元件^[4,8]。目前,已有少量有关飞秒激光与 PMMA 相互作用后会产生作用区域折射率的变化报道^[9~11],但是有关飞秒激光与 PMMA 相互作用后会产生超连续光谱现象的报道很少。本文利用掺钛蓝宝石激光脉冲在 PMMA 中产生了白光连续谱并进行了系统的测量,实验采用飞秒激光脉冲(波长为 800 nm,频率为 1 kHz,脉冲能量密度为 10^{12} W/cm²)在 PMMA 中

的成丝,发现产生渐变超连续光谱,即从连续白光逐渐变为抽运光。实验结果表明,白光谱宽为 440~1100nm;PMMA 产生的白光的阈值低,在光路中不采用聚焦透镜即可产生超连续光谱,产生的飞秒白光连续谱在 440~1100 nm 范围,而且在 550 nm 附近有一个峰值,在 620~650 nm 有吸收,超过 650 nm 后谱线均达到饱和。

2 材料制备

实验采用的材料是 PMMA,制备流程如图 1。在 MMA 中加入引发剂 AIBN,超声搅拌 25 min,使材料完全溶解。制得了 5×10^{-5} mol/L, 1×10^{-4} mol/L, 2×10^{-4} mol/L, 5×10^{-4} mol/L, 1×10^{-3} mol/L, 2×10^{-3} mol/L 六种不同浓度的溶液。得到的均匀溶液经过孔隙直径为 $0.45 \mu\text{m}$ 和 $0.22 \mu\text{m}$ 两道微孔滤膜的抽滤,以除去其中的杂质。将过滤后的溶液分装到试管中,通入干燥的氮气 5 min,以除去其中含有的氧气,减轻活性氧对聚合反应的阻碍作用。然后将试管密封,置于恒温水浴中,水浴温度设为 $40 \sim 45 \text{ }^\circ\text{C}$ 。聚合反应在避光的环境下进行。几天后(至少 5 天)样品将会完全聚合。待样品完全固化后,将水浴温度升高到 $60 \text{ }^\circ\text{C}$,然后在两天内将温度缓慢均匀地上升到 $80 \text{ }^\circ\text{C}$,以分解剩余的 AIBN。再在四天内将温度缓慢均匀地降到室温,以消除介质内部的应力。此时将介质从试管中取出。经过切割、车铣,将样品加工成圆柱体状。两端面抛光后,可得到光学均匀性好、端面平面度好的固体 PMMA 介质。

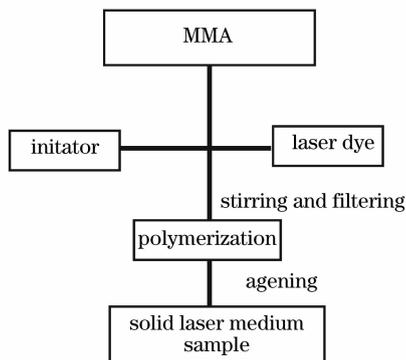


图 1 PMMA 的制备流程

Fig. 1 Process of PMMA formed

3 实验装置

实验用飞秒激光器为美国光谱物理公司两套 Ti:sapphire 飞秒激光系统,输出参数为,脉冲宽度 120 fs;带宽 12 nm;中心波长 800 nm(可调谐);重

复频率 1 kHz,对应的单脉冲脉冲能量密度 10^{12} W/cm^2 。光谱仪采用的是 Ocean 公司的 USB2000 型光谱仪。实验光路如图 2 所示,首先用一个长焦透镜($f = 30 \text{ cm}$)将基频为 800 nm 的飞秒光束聚焦于透明玻璃介质中,然后用一个共焦的透镜进行准直,光谱测量是利用 USB2000 型光谱仪——计算机数据采集系统。再用一个反射光栅对准直后的光束进行色散,在观察屏上就可以直观地观察到光谱的变化。

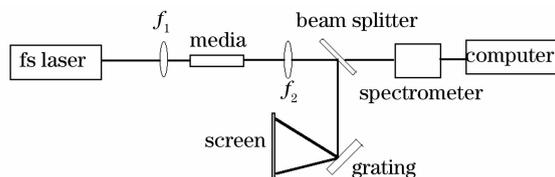


图 2 实验光路图

Fig. 2 Experimental setup

4 结果与讨论

图 3 为 800nm 激光抽运测得的 PMMA 基质的荧光谱,可以看出除了 800 nm 附近的激光谱外,其它波段没有荧光谱,所以测得的固体介质荧光谱为掺杂染料的荧光谱。

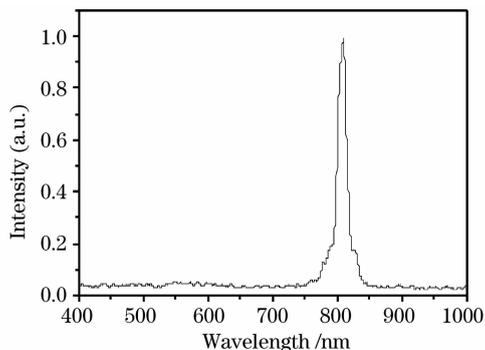


图 3 PMMA 基质的荧光谱

Fig. 3 Fluorescent line of PMMA

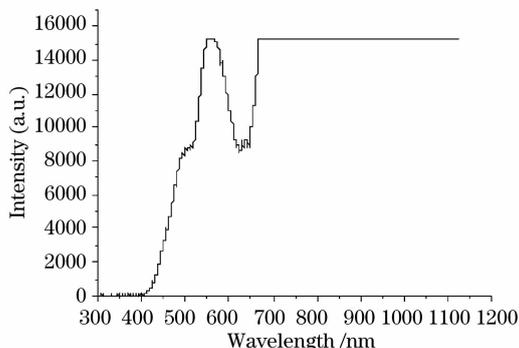


图 4 PMMA 基质的白光谱

Fig. 4 White light spectra of PMMA

去除图 2 中的聚焦透镜,把透明介质换为 PMMA 薄片,利用 0.85 mJ/kHz 飞秒激光脉冲在 PMMA 中测得的白光谱线如图 4 所示。实验中产生的飞秒白光连续谱覆盖了 440~1100 nm 的谱区,而且在 550 nm 附近有一个峰值,在 620~650 nm 有吸收,超过 650 nm 后谱线均达到饱和,证明飞秒激光脉冲的强度远远超过 PMMA 中产生白光谱线的阈值,即在 PMMA 中产生白光谱线的阈值比在水和玻璃中的低。

实验发现飞秒激光照射时间对有机玻璃 PMMA 和固体激光染料 PMMA 成丝的影响显著。

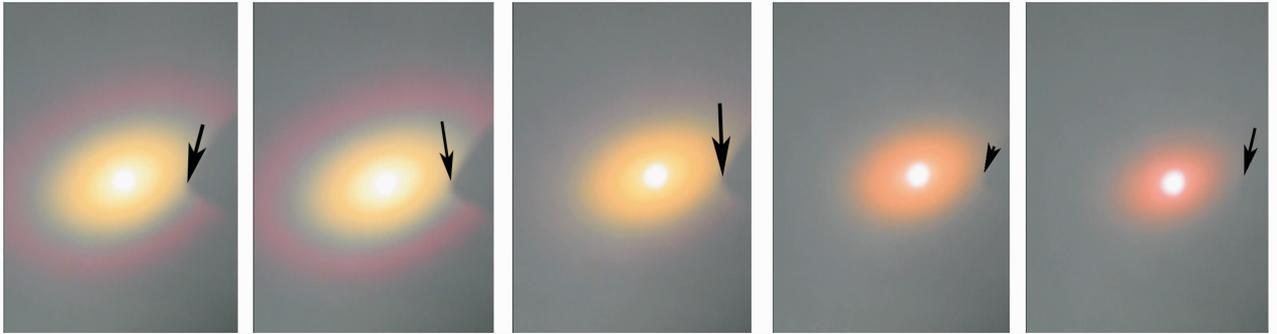


图 5 PMMA 中的渐变白光谱

Fig. 5 Variable white light spectra of the PMMA

研究了 PMMA 光损伤阈值与激光照射时间的关系。试验发现了 PMMA 损伤阈值与激光照射时间的关系,发现飞秒激光脉冲在 PMMA 中的成丝的过程具有光折变特性。用挡板遮挡光路,使飞秒激光停止作用于 PMMA,经过一个小时的时间后,飞秒激光作用于 PMMA 的同一个区域后,又会产生图 5 中出现的渐变白光图像。因此可以说飞秒激光脉冲在 PMMA 中的成丝的过程具有光折变特性。

虽然从自聚焦和自相位调制理论出发,可以对一般情况下,飞秒白光产生的机理进行解释说明。然而以上试验结果显示光克尔效应、自聚焦和自相位调制无法解释 PMMA 的渐变白光谱线。作为固体激光染料基质的 PMMA 具有热效应,导致折射率随飞秒激光照射时间的增加,PMMA 温度逐渐变化上升,从而影响到 PMMA 介质中飞秒激光的光克尔效应和自相位调制等非线性光学效应。当两种物理机制同时发生后,才能够产生上述试验结果。一是飞秒激光作用于 PMMA 后产生的热效应,使作用区的局部折射率发生变化导致光学非线性效应发生变化^[9~11];二是飞秒激光作用于 PMMA 后产生的热效应,使 PMMA 发生局部形变从而使 PMMA 固体材料的光学透过率发生变化。

发现随着飞秒激光照射时间的逐渐增加,飞秒激光在固体激光基质 PMMA 中形成的超连续光谱有渐变的特性。图 5 是在 30 s 录像中截下的图像。分别是在飞秒激光与固体激光基质 PMMA 相互作用时间为 3 s、8 s、18 s、23 s 和 28 s 后形成 5 个的超连续光谱图。图中箭头处是为定标而设的挡板的位置,可以看出,飞秒激光在固体激光基质 PMMA 形成的超连续光谱随着时间的增加而逐渐变化的。白光外的彩色光环随着时间的增加逐渐缩小,亮度逐渐减小;中心区域形成的白光超连续光谱随着时间的增加逐渐缩小,而且亮度逐渐减弱。

5 结 论

飞秒激光脉冲在 PMMA 中的成丝而产生渐变超连续光谱即从连续白光逐渐变为抽运光。发现当将飞秒脉冲在 PMMA 体内在所成丝中会出现渐变的现象,以及在等离子丝中光场横向的环状结构和出现渐变白光光谱的变化。实验和理论分析了在成丝过程中激光脉冲与 PMMA 及诱导出的等离子之间的相互作用,给出了在 PMMA 体内飞秒激光脉冲成丝的理论解释。实验研究了激光照射时间对成丝的影响。发现了激光照射时间对成丝显著影响。研究了 PMMA 光损伤阈值与激光照射时间的关系。发现飞秒激光脉冲在 PMMA 中的成丝的过程具有光折变特性。

参 考 文 献

- 1 A. Couairon, A. Mysyrowicz. Femtosecond filamentation in transparent media [J]. *Physics reports*, 2007, **441** (4): 47~189
- 2 J. Kasparian, M. Rodriguez *et al.*. White-light filaments for atmospheric analysis [J]. *Science*, 2003, **301**: 61~64
- 3 A. K. Dharmadhikari, Fara. J. Gara *et al.*. Systematic study of highly efficient white light generation in transparent materials using intense femtosecond laser pulses [J]. *Appl. Phy. B*, 2005, **80** (11): 61~66
- 4 Wataru Watanabe, Seiji Sowa, Takayuki Tamaki *et al.*

- Three-dimensional waveguides fabricated in poly (methyl methacrylate) by a femtosecond Laser [J]. *J. Appl. Phys.* , 2006, **45** : 765~767
- 5 R. A. Lamb ,K. J. Cook, A. K. Kar. Phase stability and diffraction effects in self-focused white-light filaments in water and glass[C]. *SPIE* ,2004, **5620**:218~227
- 6 Qin Yuandong, Wang Danling *et al.* . Spectral and temporal properties of femtosecond white-light continuum generated in H₂O. [J] *Chin. Phys. Lett.* ,2001, **18**(3)
- 7 A. D. Dubieties, G. Tamosauskas *et al.* . Control of multiple filamentation in air [J]. *Opt. Lett.* , 2004, **29**:1772~1774
- 8 Hiroyuki Mochizuki, Wataru Watanabe, Rikuya Ezo *et al.* . Density characterization of femtosecond laser modification in polymers [J]. *Appl. Phys. Lett.* , 2008, **92** (9):1120
- 9 K. cook, A. K. Kar. White light filaments induced by diffraction effects [J]. *Opt. Express* , 2005, **13** (6):6640~6647
- 10 Alexandra Baum , Patricia J. Scully *et al.* . Pulse-duration dependency of femtosecond laser refractive index modification in poly(methyl methacrylate) [J]. *Opt. Lett.* , 2008, **33**:651~653
- 11 Alexandra Baum, Patricia J. Scully, Maria Basanta *et al.* . Photochemistry of refractive index structures in poly (methyl methacrylate) by femtosecond laser irradiation [J]. *Opt. Lett.* , 2007, **32**(2):190~192