

温度对飞秒激光脉冲在 NaCl 溶液中成丝产生的超连续谱的影响

李贺 陈安民 于丹 李苏宇 金明星

Influence of temperature on supercontinuum generation induced by femtosecond laser filamentation in NaCl solution

Li He Chen An-Min Yu Dan Li Su-Yu Jin Ming-Xing

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 67, 184206 (2018) DOI: 10.7498/aps.67.20180686

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.67.20180686>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2018/V67/I18>

---

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

氦原子  $2^3S-2^3P$  精密光谱研究

Precision spectroscopy on the  $2^3S-2^3P$  transition of atomic helium

物理学报.2018, 67(16): 164203 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.67.20180914>

高准确度的钙离子光频标

$^{40}\text{Ca}^+$  optical frequency standards with high accuracy

物理学报.2018, 67(16): 164202 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.67.20180876>

基于高精度光腔锁频激光的分子吸收光谱测量

Measurement of molecular absorption spectrum with a laser locked on a high-finesse cavity

物理学报.2018, 67(10): 104206 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.67.20172532>

$2.0\ \mu\text{m}$  附近模拟呼吸气体中  $^{13}\text{CO}_2/^{12}\text{CO}_2$  同位素丰度的高精度实时在线测量

Highly precise and real-time measurements of  $^{13}\text{CO}_2/^{12}\text{CO}_2$  isotopic ratio in breath using a  $2\ \mu\text{m}$  diode laser

物理学报.2018, 67(6): 064206 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.67.20171861>

基于 TDLAS 技术的水汽低温吸收光谱参数测量

Measuring spectral parameters of water vapor at low temperature based on tunable diode laser absorption spectroscopy

物理学报.2017, 66(20): 204204 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.204204>

# 温度对飞秒激光脉冲在NaCl溶液中成丝产生的超连续谱的影响\*

李贺<sup>2)3)</sup> 陈安民<sup>2)3)</sup> 于丹<sup>2)4)</sup> 李苏宇<sup>1)2)3)†</sup> 金明星<sup>2)3)‡</sup>

1) (吉林大学电子科学与工程学院, 长春 130012)

2) (吉林大学原子与分子物理研究所, 长春 130012)

3) (吉林省应用原子分子光谱重点实验室, 长春 130012)

4) (中国人民解放军空军航空大学, 长春 130022)

(2018年4月13日收到; 2018年5月23日收到修改稿)

利用飞秒激光脉冲在NaCl溶液中成丝, 研究了溶液温度对飞秒激光成丝过程中产生的超连续谱的影响. 发现在激光脉冲能量较低时, 溶液温度对超连续谱的影响几乎可以忽略; 而在激光脉冲能量较高时, 随着NaCl溶液温度的升高, 超连续谱呈现出被压缩的趋势. 此外, 在激光脉冲能量较高的情况下, NaCl中会产生大量的气泡. 通过分析, 得出了飞秒激光在溶液中成丝产生的气泡是影响超连续谱发射的主要因素.

**关键词:** 飞秒激光脉冲, 成丝, 超连续谱, NaCl溶液

**PACS:** 42.62.Fi, 42.65.-k, 52.38.Hb

**DOI:** 10.7498/aps.67.20180686

## 1 引言

Fork等<sup>[1]</sup>在1983年首次实现了从紫外到近红外范围的超连续光谱, 自此揭开了利用飞秒激光产生超连续辐射的序幕. 1995年, Braun等<sup>[2]</sup>在实验上观测到激光束能在较长的一段距离内保持聚焦状态, 首次发现了飞秒激光成丝现象. 随后, 人们在这一领域开展了大量的实验和理论研究<sup>[3-7]</sup>. 飞秒激光成丝过程中发生的荧光发射<sup>[8-10]</sup>、太赫兹辐射<sup>[11-14]</sup>、超连续谱(白光)<sup>[15-18]</sup>和空气激光<sup>[19-21]</sup>等非线性效应成为最近数十年的研究热点. 其中, 由于超连续谱在远程遥感<sup>[22]</sup>、生物医学成像<sup>[23]</sup>、周期飞秒脉冲的产生<sup>[24,25]</sup>等方面的应用前景引起了人们的广泛关注.

随着对成丝诱导超连续谱的理论模拟和实验研究的不断深入, 成丝诱导超连续谱产生的机制也

逐渐清晰和完善. Gaeta<sup>[26]</sup>对超连续光谱机制进行了系统的解释: 脉冲的自陡峭和时空聚焦引起了光谱的蓝移. 但是, 多光子电离产生的等离子体会抑制光束的溃缩, 这也是为何光谱蓝移不会随着入射激光脉冲能量的增加而无限增加<sup>[27]</sup>. 飞秒激光脉冲在水中成丝产生超连续谱(白光)的研究已经有了很长的一段历史, 如Kandidov等<sup>[28]</sup>建立了飞秒激光脉冲在水中非线性传输的理论模型. 随后又出现了利用飞秒激光成丝诱导超连续谱探测水中微量物质的研究, 如Santhosh等<sup>[29]</sup>向水中添加少量的蛋白质后, 发现超连续谱会产生压缩现象.

但是, 在液体中成丝产生超连续谱的研究仍有很多问题没有解决. 例如很多物质溶于水, 溶解度易受温度的影响. 因此, 温度改变时, 溶解度也会发生改变, 若想利用飞秒激光成丝过程中产生的超连续谱对水中物质含量进行检测, 温度是需要考虑

\* 国家自然科学基金(批准号: 11704145, 11474129, 11674124)和中国博士后科学基金(批准号: 2017M610190)资助的课题.

† 通信作者. E-mail: sylee@jlu.edu.cn

‡ 通信作者. E-mail: mxjin@jlu.edu.cn

的一个重要因素. 由于海洋占地球总面积的71%, 对海洋环境进行探测是当今的热点, 而海水盐分中存在大量的NaCl, 因此, 我们以NaCl为样品, 研究了溶液温度对飞秒激光成丝诱导超连续谱的影响.

## 2 实验方法

我们利用再生放大钛宝石激光器进行实验研究, 激光器的参数为中心波长800 nm, 脉宽50 fs, 重复频率1 kHz. 图1为实验装置示意图. 激光脉冲能量通过半波片HW和格兰棱镜G的结合进行调节. 在实验中, 我们利用焦距 $f = 400$  mm的聚焦透镜L将激光束聚焦于盛装样品的样品池(其长宽高分别为50 mm, 10 mm和40 mm)中. 为了研究溶液温度对飞秒激光诱导超连续谱的影响, 我们将样品池放置在加热装置上, 通过加热装置控制溶液温度. 在样品池中产生的前向超连续谱被积分球I收集后, 通过光纤导入爱万提斯光谱仪(AvaSpec-1650F-USB2)中.

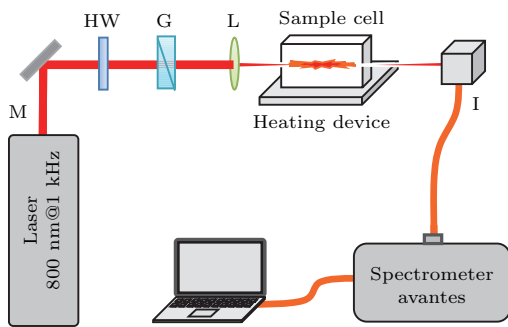


图1 测定飞秒激光脉冲在不同样品溶液中成丝所产生的超连续谱的实验装置示意图(HW, 半波片; G, 格兰棱镜; L, 聚焦透镜; I, 积分球; M, 反射镜)

Fig. 1. Schematic of experimental setup to measure the supercontinuum generated during the femtosecond filamentation in different liquid samples. HW, half-wave plate; G, Glan prism; L, focusing lens; I, integrating sphere; M, mirror.

## 3 结果与讨论

将盛有NaCl溶液的石英样品池置于电动平移台上, 在激光传播的方向上调节细丝在样品池中的位置. 先将样品池的前表面置于透镜焦点附近, 每隔2.5 mm测一组数据, 图2(a)给出了20个测量位置处的超连续谱. 从图2(a)可以看出随着样品池的移动, 光谱强度先增强, 增加到最大程度后, 几乎保持不变, 随后光谱强度逐渐减小. 光谱强度保

持稳定的区域说明丝完全处于样品池中, 并且在此移动范围内光谱的吸收和散射对前向光谱的影响几乎可以忽略. 而当激光脉冲焦点位于样品池前、后壁附近时, 在水中所成的丝的长度较前者小, 导致超连续谱的强度弱. 在后面的实验中, 我们将样品池固定在光谱最强处, 从而保证在增加激光能量时, 丝依然完全处于样品池中. 在激光脉冲通过样品池后, 将白色纸片放置在激光传播方向上截取光斑, 并用数码相机对光斑拍照, 可以看到彩色的圆环, 如图2(b)所示. 由于不同的频率发散角是不同的, 频率越高, 其发散角就越大. 对于径向光谱而言, 可以得到一个彩虹状圆环, 但只有圆环中心的白色光斑是白光, 不包括四周的彩色圆环. 从图2(b)能够看到光谱的排列顺序与正常的衍射产生的光谱排列顺序恰好相反, 即低频部分在圆环内侧, 高频部分在圆环外侧, 此现象也被称之为锥角辐射[3].

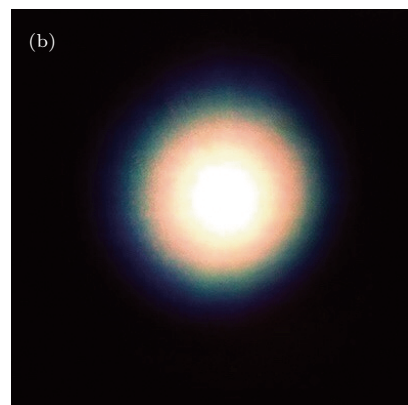
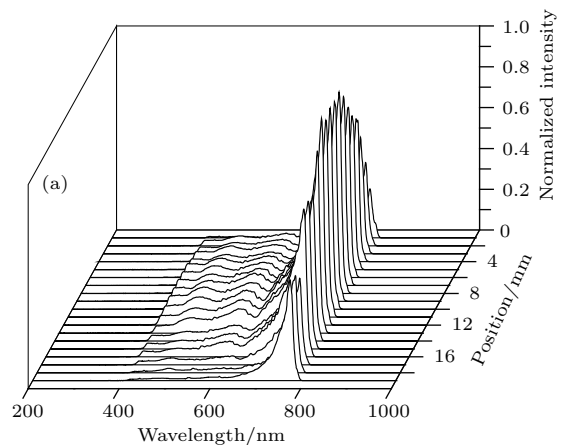


图2 (a) 飞秒激光脉冲聚焦于样品池不同位置处时的超连续谱; (b) 沿着激光传播方向的光斑

Fig. 2. (a) Supercontinuum generated by femtosecond laser pulse which is focused at different positions in the sample cell; (b) light spot along the propagation direction of laser.

利用加热装置调节石英样品池中的NaCl溶液(0.04 g NaCl溶于15 mL水中)的温度,由于实验环境的影响,温度会有小范围的波动.图3(a)给出了脉冲能量为20 μJ时,飞秒激光在不同温度的NaCl溶液中成丝诱导的超连续谱.从图3(a)可以看到当NaCl溶液的温度从30 °C上升到65 °C的过程中,超连续谱几乎保持不变.而当入射激光脉冲能量提高到50 μJ后,也得到了相同的结果,如图3(b)所示.不同的是,随着入射激光能量的增大,超连续谱更强.这是因为随着激光能量的增大,多光子电离过程增强,电离产生的等离子体 $\rho(t)$ 增多.等离子体密度的变化,会引起光谱的变化[3]:

$$\omega(t) = \omega_0 + \frac{\omega_0 z}{2n_0 \rho_c c} \frac{d\rho(t)}{dt}, \quad (1)$$

其中 $\omega_0$ 为激光脉冲的中心频率, $c$ 为光速, $\rho_c = \epsilon_0 m_e \omega_0^2 / e^2$  ( $\epsilon_0$ ,  $m_e$ 和 $e$ 分别为真空介电常数、电子

密度和电子电荷)为等离子体临界密度.(1)式表明,等离子体密度的变化会引起光谱的蓝移,其实这也是一种自相位调制过程.从图3还可以看到超连续谱在600 nm附近出现“凹陷”,研究表明,这种现象是由于水分子发生逆拉曼效应引起的.因此,“凹陷”的位置与掺入水中的物质、激光强度等因素均无关系[16,29].

当脉冲能量增加到200 μJ左右时,我们测定了不同温度的NaCl溶液中产生的超连续谱,如图4(a)所示.从图4(a)可以看出,随着NaCl溶液温度的升高,超连续谱的强度降低了.这显然与低脉冲能量下溶液温度对超连续谱几乎无影响的现象不同,是否意味着在较高的脉冲能量下,溶液温度的升高会对超连续谱的产生起到抑制作用?下面将对上述现象进行分析.

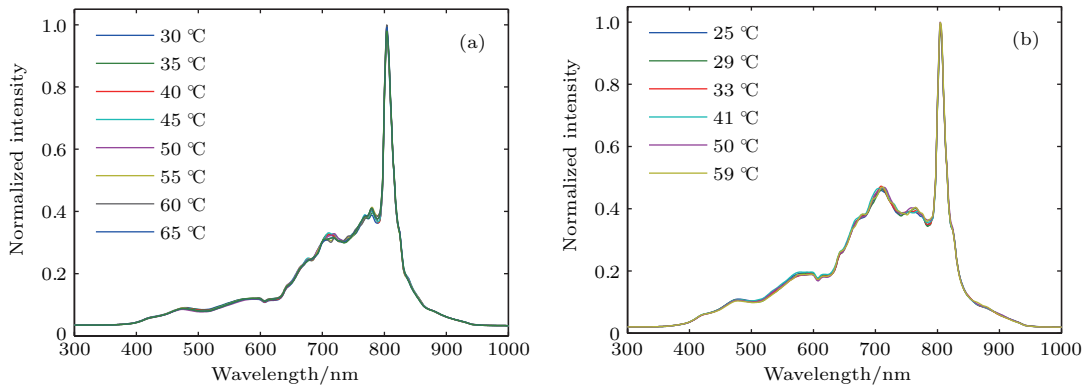


图3 能量为(a) 20 μJ和(b) 50 μJ的飞秒激光脉冲在NaCl溶液中成丝诱导超连续谱随温度的变化  
Fig. 3. Variation of supercontinuum induced by femtosecond laser pulse in NaCl solution with the solution temperature as the pulse energy is (a) 20 μJ and (b) 50 μJ.

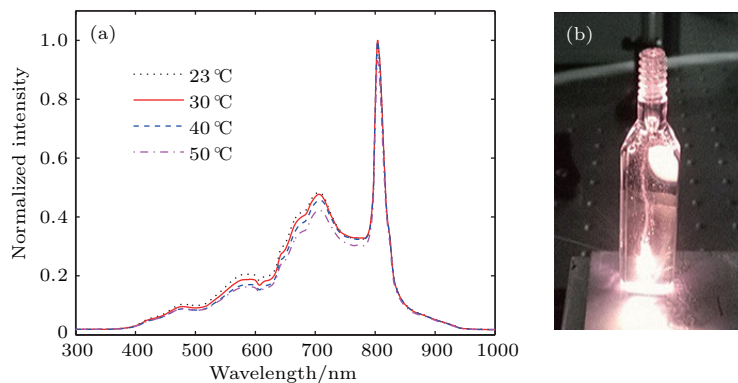
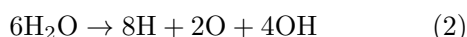


图4 脉冲能量为200 μJ左右条件下,(a)黑色点线、红色实线、蓝色虚线以及洋红色短点虚线分别是温度为23, 30, 40和50 °C时NaCl溶液中产生的超连续谱;(b)飞秒激光脉冲在NaCl溶液中成丝产生的气泡  
Fig. 4. (a) The dotted black, solid red, dashed blue and dash-dotted magenta short lines represent the supercontinuum induced by femtosecond laser pulse in NaCl solution when the solution temperature are 23, 30, 40 and 50 °C, respectively; (b) bubbles generated by femtosecond laser filamentation in NaCl solution at room temperature. The pulse energy is 200 μJ.



观察发现,在脉冲能量较高时,在样品池中NaCl溶液中产生了大量向上移动的气泡(由于我们使用的样品池侧面是毛玻璃,无法观测气泡产生过程,故改用厚度为2 mm的比色皿,在室温下拍摄气泡产生过程,如图4(b)所示);而在脉冲能量较低时,只能看到少量气泡,而且气泡很小.我们知道气泡能够引起光的反射和折射<sup>[30]</sup>,这必然会对光谱强度造成影响.因此,我们判断气泡的产生是引起上述现象的原因.气泡的产生主要是因为飞秒激光脉冲与水分子反应产生了H<sub>2</sub>, O<sub>2</sub>和H<sub>2</sub>O<sub>2</sub><sup>[31,32]</sup>,反应式如下<sup>[31]</sup>:



飞秒激光在NaCl成丝时,水发生电离会产生O<sup>+</sup>, H<sup>+</sup>和OH<sup>+</sup>,它们与电子复合形成H, O和OH自由基,如(2)式所示;H, O和OH自由基经过复合会形成H<sub>2</sub>, O<sub>2</sub>和H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>,如(3)式所示.在复合过程会释放热量,使自聚焦区域的水分子沸腾,形成水蒸气.因此,气泡除了多光子电离产生的气体,还有大量的水蒸气.由于H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>很不稳定,等离子体产生的连续冲击波也会将H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>分解成O<sub>2</sub>和H<sub>2</sub>O.当飞秒激光脉冲经过气泡时,会与气泡中的成分(如水蒸气、O<sub>2</sub>和H<sub>2</sub>)发生相互作用,产生荧光和超连续谱.但是随着温度的升高,气泡内的水蒸气会增多,有助于白光的产生,使超连续谱增强.但在本文中我们观察到,随着溶液温度的升高,超连续谱却减弱了,表明气泡中的成分与激光脉冲发生的非线性效应对超连续谱强度的影响可以忽略,另一方面,气泡中的成分可能对超连续谱有吸收,从而引起超连续谱强度的降低.因此我们认为气泡对光谱反射和折射以及气泡中成分对光谱的吸收是引起超连续谱强度抑制的主要原因.

在激光脉冲能量较低时,多光子电离速率较低,产生的气泡较少,气泡体积也较小.因此在溶液温度升高过程中,气泡和水蒸气对光谱的吸收和散射可以忽略.这也解释了在低脉冲能量下,NaCl溶液温度对超连续谱的产生几乎无影响的原因.而当脉冲能量较高时,多光子电离速率较高,此外,丝内的光强钳制作用使等离子体通过劈裂成多丝,等离子体的体积会增加,而且丝的长度会得到有效的延长<sup>[9]</sup>,在这种情况下产生的气泡大幅增加,小的气泡相互结合形成较大的气泡,在浮力的作用下会形成图4(b)所示的向上移动的气泡.而随着NaCl

溶液温度的升高,气泡的体积会增大,对光谱的吸收和散射作用会越来越强烈,因此能够看到光谱随着温度的升高有被压缩的趋势.

## 4 结 论

研究了溶液温度对飞秒激光成丝诱导超连续谱的影响.在入射激光脉冲能量较低时,温度的改变对超连续谱几乎无影响;而在入射激光脉冲能量较高时,超连续谱的强度随着温度的升高而降低.我们认为这是由于多光子电离产生的气泡以及水蒸气分子对光谱造成了吸收和散射,表明升高溶液温度对飞秒激光诱导超连续谱的产生有抑制作用.在利用飞秒激光成丝诱导超连续谱对水中物质进行检测时,通过控制脉冲能量可有效地避免温度的影响.此外,在高能量的条件下,通过改变溶液温度控制气泡的产生可以有效地调控超连续谱的产生.

## 参考文献

- [1] Fork R L, Shank C V, Hirlimann C, Yen R, Tomlinson W J 1983 *Opt. Lett.* **8** 1
- [2] Braun A, Korn G, Liu X, Du D, Squier J, Mourou G 1995 *Opt. Lett.* **20** 73
- [3] Couairona A, Mysyrowicz A 2007 *Phys. Rep.* **441** 47
- [4] Chin S L, Wang T J, Marceau C, Wu J, Liu J S, Kosareva O, Panov N, Chen Y P, Daigle J F, Yuan S, Azarm A, Liu W W, Seideman T, Zeng H P, Richardson M, Li R, Xu Z Z 2012 *Laser Phys.* **22** 1
- [5] Couairon A, Brambilla E, Corti T, Majus D, Ramírez-Góngora O D J, Kolesik M 2011 *Eur. Phys. J. Special Topics* **199** 5
- [6] Li S Y, Guo F M, Yang Y J, Jin M X 2015 *Chin. Phys. B* **24** 114207
- [7] Liu W W 2014 *Chin. J. Phys.* **52** 465
- [8] Xu H, Cheng Y, Chin S L, Sun H B 2015 *Laser Photon. Rev.* **9** 275
- [9] Li H, Li S Y, Li S C, Liu D L, Tian D, Chen A M, Wang Y, Wang X W, Zhang Y F, Jin M X 2016 *High Power Laser Sci. Eng.* **4** e7
- [10] Shi Y, Chen A, Jiang Y, Li S, Jin M 2016 *Opt. Commun.* **367** 174
- [11] Li M, Li A Y, He B Q, Yuan S, Zeng H P 2016 *Chin. Phys. B* **25** 044209
- [12] Wang T J, Yuan S, Chen Y P, Chin S L 2013 *Chin. Opt. Lett.* **11** 011401
- [13] Zhang Z, Chen Y, Chen M, Zhang Z, Yu J, Sheng Z, Zhang J 2016 *Phys. Rev. Lett.* **117** 243901
- [14] Zhao J, Guo L, Chu W, Zeng B, Gao H, Cheng Y, Liu W 2015 *Opt. Lett.* **40** 3838

- [15] Liu Z Y, Ding B W, Hu B T 2013 *Chin. Phys. B* **22** 075204
- [16] Li H, Shi Z, Wang X W, Sui L Z, Li S Y, Jin M X 2017 *Chem. Phys. Lett.* **681** 86
- [17] Qin Y D, Zhu C J, Yang H, Gong Q H 2000 *Chin. Phys. Lett.* **17** 413
- [18] Li D, Zhang L, Zafar S, Song H, Hao Z, Xi T, Gao X, Lin J 2017 *Chin. Phys. B* **26** 074213
- [19] Luo Q, Liu W, Chin S L 2003 *Appl. Phys. B* **76** 337
- [20] Yao J P, Zeng B, Xu H L, Zhang H S, Chin S L, Cheng Y, Xu Z Z 2011 *Phys. Rev. A* **84** 051802
- [21] Mitryukovskiy S, Liu Y, Ding P J, Houard A, Mysyrowicz A 2014 *Opt. Express* **22** 12750
- [22] Kasparian J, Rodriguez M, Méjean G, Yu J, Salmon E, Wille H, Bourayou R, Frey S, André Y B, Mysyrowicz A, Sauerbrey R, Wolf J P, Wöste L 2003 *Science* **301** 61
- [23] Tu H, Boppart S A 2013 *Laser Photon. Rev.* **7** 628
- [24] Bergé L, Rolle J, Köhler C 2013 *Phys. Rev. A* **88** 023816
- [25] Xu F, Liu J S, Li R X, Xu Z Z 2007 *Chin. Opt. Lett.* **5** 490
- [26] Gaeta A L 2000 *Phys. Rev. Lett.* **84** 3582
- [27] Liu W, Petit S, Becker A, Akozbek N, Bowden C M, Chin S L 2002 *Opt. Commun.* **202** 189
- [28] Kandidov V P, Kosareva O G, Golubtsov I S, Liu W, Becker A, Akozbek N, Bowden C M, Chin S L 2003 *Appl. Phys. B* **77** 149
- [29] Santhosh C, Dharmadhikari A K, Dharmadhikari J, Alti K, Mathur D 2010 *Appl. Phys. B* **99** 427
- [30] Cui Q N, Yao J P, Ni J L, Cheng Y 2012 *J. Opt.* **14** 075205
- [31] Lagacé S, Chin S L 1996 *Appl. Opt.* **35** 907
- [32] Mizushima Y, Saito T 2015 *Appl. Phys. Lett.* **107** 114102

# Influence of temperature on supercontinuum generation induced by femtosecond laser filamentation in NaCl solution\*

Li He<sup>2)3)</sup> Chen An-Min<sup>2)3)</sup> Yu Dan<sup>2)4)</sup> Li Su-Yu<sup>1)2)3)†</sup> Jin Ming-Xing<sup>2)3)‡</sup>

1) (*College of Electronic Science and Engineering, Jilin University, Changchun 130012, China*)

2) (*Institute of Atomic and Molecular Physics, Jilin University, Changchun 130012, China*)

3) (*Jilin Provincial Key Laboratory of Applied Atomic and Molecular Spectroscopy, Changchun 130012, China*)

4) (*Aviation University of Air Force, Changchun 130022, China*)

( Received 13 April 2018; revised manuscript received 23 May 2018 )

## Abstract

Supercontinuum generation is an important nonlinear phenomenon that occurs during the femtosecond laser filamentation in transparent medium, and its potential and promising applications like remote sensing, biomedical imaging and generation of few-cycle femtosecond pulses, etc. have aroused a great deal of interest. With the extensive and thorough theoretical simulation and experimental research of the supercontinuum generation in air, the mechanism of the supercontinuum induced by femtosecond laser filament in gaseous medium has become clear. However, the femtosecond laser filament-induced supercontinuum in liquid is still an open question. In this work, by taking NaCl solution for example, we investigate the influence of solution temperature on the supercontinuum induced by the femtosecond laser filamentation in solution. It is found that when the laser pulse energy is relatively low (e.g. 20 and 50  $\mu\text{J}$ ), the influence of solution temperature on supercontinuum generation can be neglected. In contrast, when the laser pulse energy is relatively high (e.g. 200  $\mu\text{J}$ ), with the increase of solution temperature, the supercontinuum generation shows a suppression tendency. The water molecules in NaCl solution are photo-ionized due to the high intensity of femtosecond laser filament, generating a great deal of oxygen ( $\text{O}_2$ ), hydrogen ( $\text{H}_2$ ) and water vapor ( $\text{H}_2\text{O}$ ), and thus forming bubbles that float upwards. In the case of lower pulse energy, the multi-photon ionization rate is low, therefore, only a few bubbles are generated, and they are small in size, which hardly affects the supercontinuum generation. In the case of higher pulse energy, a large number of bubbles can be observed in the NaCl solution, and their sizes become increasingly large when the temperature of NaCl solution increases. The generation of bubbles leads to the reflection and refraction of light, which inevitably influences the spectral intensity. Furthermore, the components (e.g.  $\text{O}_2$ ,  $\text{H}_2$  and  $\text{H}_2\text{O}$ ) in the bubbles also absorb the supercontinuum, which further lowers the spectral intensity. This work reveals that the main factors leading to the supercontinuum suppression in solution can be attributed to the generation of bubbles during femtosecond laser filamentation and the scattering and absorption of light caused by water vapor in bubbles. When we detect the components in solution via the femtosecond laser filament-induced supercontinuum, the influence of temperature can be effectively eliminated by adjusting the incident pulse energy. Moreover, in the case of high pulse energy, the supercontinuum generation can be controlled by adjusting the solution temperature. This study is conducive to the application of supercontinuum as well as its generation.

**Keywords:** femtosecond laser pulse, filamentation, supercontinuum, NaCl solution

**PACS:** 42.62.Fi, 42.65.-k, 52.38.Hb

**DOI:** 10.7498/aps.67.20180686

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11704145, 11474129, 11674124) and the China Postdoctoral Science Foundation (Grant No. 2017M610190).

† Corresponding author. E-mail: [sylee@jlu.edu.cn](mailto:sylee@jlu.edu.cn)

‡ Corresponding author. E-mail: [mxjin@jlu.edu.cn](mailto:mxjin@jlu.edu.cn)