

文章编号: 1001-3806(2007)01-0044-03

## 碳纳米管悬浮液光限幅机理实验研究

骆永全, 王伟平\*, 李剑峰

(中国工程物理研究院 流体物理研究所, 绵阳 621900)

**摘要:** 为了研究碳纳米管悬浮液的光限幅机理, 测量了碳纳米管悬浮液的散射能量和透射能量随入射激光能量密度的变化曲线, 得到了不同入射激光能量密度下, 散射光能量在平行于入射线偏振光偏振方向的散射面内的角度分布, 并对碳纳米管悬浮液进行了探针光实验。根据米氏散射理论, 计算了在不同大小的散射中心下, 碳纳米管悬浮液的散射光能量在平行于入射线偏振光偏振方向的散射面内的角度分布, 以及散射截面随散射中心半径大小的变化。结果表明, 碳纳米管悬浮液光限幅可能源于碳纳米管吸收激光能量汽化形成的碳气泡引起的非线性散射。

**关键词:** 非线性光学; 非线性散射; 米氏理论; 碳纳米管

**中图分类号:** O437 **文献标识码:** A

### Investigation of an optical limiting mechanism in carbon nanotube suspension

LUO Yong-quan, WANG Wei-ping, LI Jian-feng

(Institute of Fluid Physics, China Academy of Engineering Physics, Mianyang 621900, China)

**Abstract:** To find out the optical limiting mechanism of carbon nanotube suspension, the scattered and transmitted energy for the carbon nanotube suspension, as a function of incident fluence, is measured. The angular scattering profile at different incident fluences for 10 ns, 1064nm linearly polarized light parallel to the scattering plane is obtained and pump-probe time-resolved experiments also performed. Based on Mie theory, the scattering energy distribution and scattering cross-section varying with carbon vapour bubble radius is calculated, which qualitatively agree with experiment results. The results indicate that the optical limiting mechanism of carbon nanotube suspension probably originated from the nonlinear scattering of carbon vapour bubble formed by light absorption.

**Key words:** nonlinear optics; nonlinear scattering; Mie theory; carbon nanotubes

## 引 言

自从 1965 年 GORDEN 等<sup>[1,2]</sup>提出光限幅概念以来,人们在光限幅的研究方面已做了大量的工作<sup>[3,4]</sup>。涉及的光限幅机制有:反饱和吸收、双光子吸收、自由载流子吸收、非线性折射、非线性散射和光折变等。所使用的光限幅材料也多种多样,如碳黑悬浮液、 $C_{60}$ 等。近年来,实验发现碳纳米管在光限幅中表现出良好的性质,其光限幅带宽宽,响应时间短,限幅阈值较低,使其成为继  $C_{60}$  后又一理想的光限幅材料<sup>[5~7]</sup>。对于其限幅机理,人们主要使用各种实验手段如  $z$  扫描方法等来加以推测<sup>[8~11]</sup>。下面通过直接测量碳纳米管悬浮液的散射能量和透射能量随入射激光能量的变化,限幅过程中散射光能量的角度分布以及探针光实验来探讨其光限幅机理。

## 1 散射能量和透射能量的测量

利用超声波降解法制备了碳纳米管的水与表面活性剂悬浮液,在悬浮液中加入少量的表面活性剂是为了增加碳纳米管的悬浮浓度。将制备好的悬浮液放置在 10mm 厚的石英比色皿中,然后将比色皿放在积分球的球心处。积分球的直径为 100mm,内表面镀有对 1064nm 激光的全反射膜,散射光在积分球内经多次反射后均匀化,积分球表面开有 3 个孔,前后两个孔用于光束传输,另外一个孔放置能量探测器用于测量散射光的能量。使用 Nd:YAG 调 Q 激光器辐照样品,激光为基横模输出,波长 1064nm,脉冲半宽度 10ns,光斑直径 10mm。为了避免热效应累积,实验中采用单次触发模式。实验装置如图 1 所示,激光被触发后经分光镜分光,反射光照射在能量计 1 上用于检测入射到样品上的激光能量,透射部分辐照在位于积分球球心的样品上,能量计 2 和 3 分别测量散射和透射激光能量。图 2 中分别为样品的透射、散射和吸收能量随入射激光能量的变化曲线。其中样品吸收的激光能量是通过

作者简介:骆永全(1974-),男,硕士研究生,助理研究员,从事光电对抗技术研究。

\* 通讯联系人。E-mail: wwpwzc@yeah.com

收稿日期: 2005-11-14;收到修改稿日期: 2005-12-09

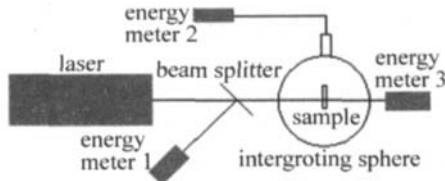


Fig 1 Experimental setup

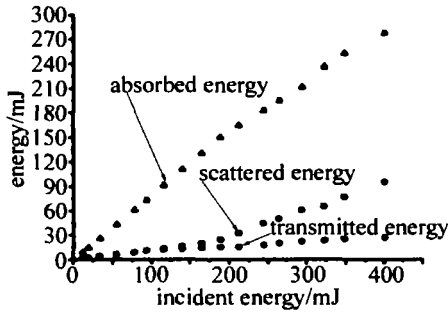


Fig 2 The curve of scattered, transmitted and absorbed energy versus the input energy

入射能量减去相应的透射能量和散射能量得到的。

从图 2 可以得到,在入射激光能量较小时,透射、散射和吸收能量随入射能量的增加而线性增加。随着入射激光能量的进一步提高,碳纳米管悬浮液表现出光限幅的特性,即透射能量不再随入射能量线性增加,其增长逐渐变缓,而散射能量则迅速非线性增长,吸收能量呈近似线性变化。由以上分析可知,在碳纳米管悬浮液的光限幅过程中发生了非线性散射,而吸收则基本上是线性的。因此,其光限幅机理不同于  $C_{60}$  的非线性吸收,而是源于非线性散射。

### 2 探针光实验

为了研究材料和激光脉冲作用,材料内部发生的变化,使用探针光技术<sup>[9]</sup>对其进行了实验研究。实验用 He-Ne 光作为探针光, Tektronix P6701B 探测器作为接收器,其响应波段为 500nm~950nm,响应时间 1ns。图 3 中记录了不同入射激光能量密度下,探针光信号波形的变化。

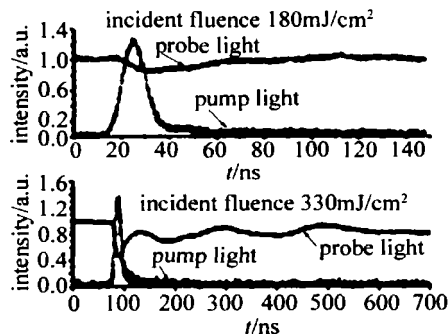


Fig 3 The change of the probe light signal at different incident fluence

从图 3 中可以看出,在脉冲作用期间,探针光由于激光和材料相互作用产生的非线性散射而被衰减,随着入射激光能量密度的增大,探针光衰减地越厉害,并

且探针光信号在脉冲过后出现周期性地振荡。这可能是由于激光与材料相互作用产生了作为非线性散射中心的碳气泡破裂或迁移出光斑区域,探针光散射部分减少,透过部分增强;随后,另外一些碳气泡逐渐变大,其散射部分增强,透过部分降低所致。通过探针光实验进一步证实了非线性散射的存在,而非线性散射中心有可能是碳纳米管吸收激光能量后升华形成的快速膨胀的碳气泡。

### 3 散射光能量的角度分布

为了研究材料中的非线性散射过程,测量了平行于入射线偏振光偏振方向的散射面内  $10^\circ \sim 170^\circ$  处散射光能量的角度分布。实验光路如图 4 所示。

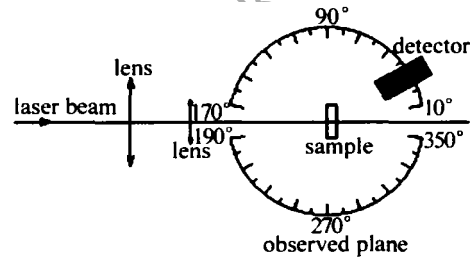


Fig 4 Experimental setup for angular scattering profile measurement

图 4 中入射激光为偏振方向在水平方向的线偏振光,经缩束镜缩束后,照射到碳纳米管悬浮液样品上。在一定的入射激光能量密度下,用能量探测器在观测面内每隔  $5^\circ$  测量一组散射光的能量数据,从而得到散射光的角度分布,实验结果如图 5 所示。

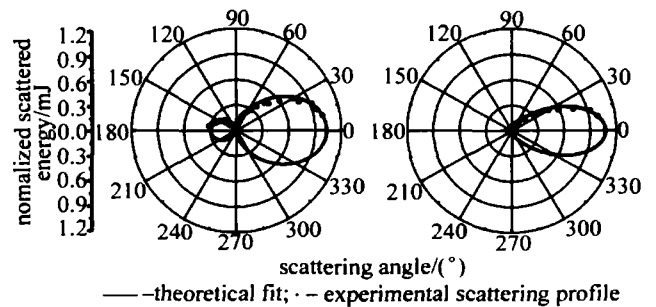


Fig 5 Angular scattering profile at different incident fluence

图 5 中的离散点分别为入射激光能量密度在  $300 \text{ mJ/cm}^2$  和  $1.8 \text{ J/cm}^2$  时,散射光能量在观测面内的角度分布;实线部分为根据米氏散射理论<sup>[12]</sup>,对样品中不同大小的散射中心形成的散射光能量角度分布的理论模拟曲线,计算中假设散射中心为碳气泡并取其复折射率为  $m = 2.16 - 0.77i$ ,与半径相关的变量  $x$  分别取 1.0 和 2.2。其中  $x = kr$ ,  $k$  为液体中的波数,  $r$  为气泡半径。通过实验结果和理论计算比较可以发现,随着入射激光能量密度的增加,其平行于线偏振方向的散射面内的散射能量的角度分布发生了较大的变化,特别是后向散射光分布的改变尤其明显。这与改

变散射中心半径大小得到的散射光能量的理论分布相吻合,由此可以推测出入射激光能量密度和碳纳米管悬浮液中形成的碳气泡的大小存在某种关系,即入射能量密度越高,在脉冲作用期间形成的碳气泡的平均半径越大。

图6为根据米氏散射理论,计算的一定浓度的碳

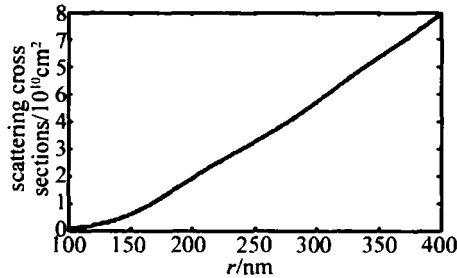


Fig 6 The curve of scattering cross-section versus carbon bubble vapour radius

气泡的散射截面随散射半径的变化曲线,从中可以看到,随着碳气泡半径的增加,其散射截面呈非线性增加。由上述一系列实验结果可以得出,碳纳米管悬浮液的光限幅机理可能源于碳纳米管吸收激光能量后升华形成膨胀着的碳气泡对入射光产生强烈的非线性散射。也就是说随着入射激光能量密度的增加,在脉冲作用期间形成的碳气泡的平均半径越大,散射能量随着碳气泡半径的增大呈非线性增加,又碳纳米管对激光的吸收基本上是线性的,从而对入射激光产生了光限幅现象。

#### 4 小结

综合以上实验和计算结果可以得到,碳纳米管作为一种宽带光限幅材料,其悬浮液的光限幅机理可能源于碳纳米管吸收激光能量后升华,形成快速膨胀的

碳气泡作为非线性散射中心对入射激光产生的强烈的非线性散射。

#### 参考文献

- [1] GORDEN J P, LEITE R C C, MOORE R S *et al* Long-transient effects in lasers with inserted liquid samples [J]. J A P, 1965, 36 (1): 3~8
- [2] LEITE R C C, PORTO S P S, DAMEN T C D. The thermal lens effect as a power-limiting device [J]. Appl Phys, 1967, 10 (3): 100~101.
- [3] ZHA Z Zh, HU Y. Realization of laser protection using nonlinear optics principles [J]. Laser Technology, 1994, 18 (2): 69~73 (in Chinese).
- [4] YU D B, SUN X Q, WANG Zh R. The present research of optical limiting materials and their application to laser radiation protection [J]. Laser Technology, 1999, 23 (5): 262~266 (in Chinese).
- [5] ZHANG P, N U Y X, GUO Zh X *et al* Application of carbon nanotube in optical limiting [J]. Laser & Optoelectronics Progress, 2004, 41 (11): 51~55 (in Chinese).
- [6] VIVIEN L, RIEHL D, LANCON P. Pulse duration and wavelength effects on the optical limiting behavior of carbon nanotube suspensions [J]. Opt Lett, 2001, 26 (4): 223~225.
- [7] SUN X, YU R Q, XU G Q *et al* Broadband optical limiting with multi-walled carbon nanotubes [J]. A P L, 1998, 73 (25): 3632~3634.
- [8] QIAN Sh X, WANG GM. Nonlinear optics [M]. Shanghai: Fudan University Press, 2001. 126~132 (in Chinese).
- [9] MANSOUR K, SOLEAU M J, van STRYLAND E W. Nonlinear optical properties of carbon-black suspensions (ink) [J]. J O S A, 1992, B9 (7): 1100~1109.
- [10] VIVIEN L, RIEHL D, HACHE F *et al* Optical limiting properties of carbon nanotubes [J]. Physica, 2002, B323 (3): 233~234.
- [11] BELOUSOVA IM, MIRONOVA N G, SCOBELV A G *et al* The investigation of nonlinear optical limiting by aqueous suspensions of carbon nanoparticles [J]. Opt Commun, 2004, 235: 445~452.
- [12] BOHREN C F, HUFFMAN D R. Absorption and scattering of light by small particles [M]. New York: A Wiley-Interscience Press, 1983. 82~129.
- [13] LID H, ZHAO X F, CHEN H X *et al* Algorithm study of wavefront reconstruction based on the cyclic radial shear interferometer [J]. High Power Laser and Particle Beams, 2002, 14 (2): 223~227 (in Chinese).
- [14] ZHANG Y X, ZHU T, XU Zh Y *et al* Dislocation and branch point in optical front-1 structure theory [J]. Laser Technology, 2002, 26 (2): 97~101 (in Chinese).
- [15] ZHONG J A, WANG M, LID aCh. Fourier transform moire deflectometry for the automatic measurement of gas temperature field [J]. Chinese Journal of Lasers, 1997, 24 (3): 276~280 (in Chinese).
- [16] ZHANG L, LU S N, L N D Y *et al* The progress of extracting phase information based on spatial carrier fringe pattern analysis [J]. Laser Technology, 2005, 29 (1): 90~93 (in Chinese).

(上接第40页)

tica Sinica, 1994, 14 (1): 55~61 (in Chinese).

- [11] KOHNO T, MATSUMOTO D, YAZAWA T *et al* Radial shearing interferometer for in-process measurement of diamond turning [J]. Opt Engng, 2000, 39 (10): 2696~2699.
- [12] WANG M, ZHANG B, SHOU P N G *et al* Radial shearing interferometer for aspheric surface testing [J]. Proc SPIE, 2002, 4927: 673~676.
- [13] LID H, ZHAO X F, CHEN H X *et al* Algorithm study of wavefront reconstruction based on the cyclic radial shear interferometer [J]. High Power Laser and Particle Beams, 2002, 14 (2): 223~227 (in Chinese).