

Нелинейное пропускание одностенных углеродных нанотрубок в тяжелой воде на длине волны 1.54 мкм; получение режима самосинхронизации мод в лазере на стекле с Er^{3+} с помощью пассивного затвора на основе этих нанотрубок

Н.Н.Ильичев, Е.Д.Образцова, С.В.Гарнов, С.Е.Мосалева

Исследовано нелинейное пропускание взвешенных в D_2O одностенных углеродных нанотрубок на длине волны $\lambda = 1.54$ мкм. При длительности зондирующего импульса 250 нс и максимальной интенсивности на входе в кювету 40 МВт/см^2 уменьшение коэффициента поглощения составило 3.6 см^{-1} при коэффициенте поглощения в слабом поле около 17 см^{-1} . При использовании кюветы с этим веществом в качестве пассивного фильтра получены режимы модуляции добротности и самосинхронизации мод в импульсном лазере на стекле с Er^{3+} .

Ключевые слова: нанотрубки, оптические нелинейные эффекты, синхронизация мод.

1. Введение

Одностенные углеродные нанотрубки (ОУН) в настоящее время являются объектом интенсивных исследований. К основным разрабатываемым направлениям относятся совершенствование технологии получения ОУН [1] и выявление особенностей их электронной структуры [2], проявляющихся в спектрах поглощения, люминесценции [1, 3–6] и резонансного комбинационного рассеяния света. Традиционные технологии синтеза [7–9] обеспечивают получение нанотрубок, объединенных в пучки с различной геометрией и разными типами проводимости. Значительный прогресс в области приготовления одиночных ОУН связан с технологией обработки интенсивным ультразвуком их взвеси в воде с добавлением поверхностно-активных веществ и с последующим центрифугированием, позволяющим разделить фрагменты дисперсного материала по массе [1]. Эта технология дает возможность с хорошей воспроизводимостью получать взвеси нанотрубок в воде со значительным процентным содержанием одиночных нанотрубок [1]. Их наличие проявляется в виде отдельных, хорошо разрешенных пиков в спектрах оптического поглощения и люминесценции [1, 4, 6], а также в спектрах комбинационного рассеяния света.

Исследования динамики релаксации электронных возбуждений ОУН, проведенные в работах [10, 11], указывают на существование нескольких времен электронной релаксации, которые лежат в диапазоне 50 фс–15 пс. Этот диапазон интересен с точки зрения создания различных оптических элементов на основе ОУН для использования их в качестве быстрых пассивных затворов для лазеров. Здесь необходимо обратить внимание на то,

что для части спектра вблизи $\lambda = 1.5$ мкм подобных затворов на основе красителей в настоящее время, насколько нам известно, не существует. О получении режима самосинхронизации мод лазера на волокне, активированном Er^{3+} , где в качестве пассивного затвора использовался элемент на основе ОУН, впервые сообщалось в [12].

В настоящей работе исследуются нелинейное пропускание ОУН и возможности применения пассивного затвора на основе ОУН в импульсном твердотельном лазере на стекле с Er^{3+} ($\lambda = 1.54$ мкм) с ламповой накачкой.

2. Нелинейное пропускание взвеси ОУН в D_2O на длине волны 1.54 мкм

В экспериментах применялись неочищенные ОУН, полученные методом NiPCO – методом каталитического разложения СО при высоком давлении [13]. Была приготовлена взвесь нанотрубок в растворе поверхностно-активного вещества в тяжелой воде. Для разделения пучков нанотрубок взвесь в течение одного часа была подвергнута ультразвуковой обработке и ультрацентрифугированию (170000 g). Для дальнейших экспериментов использовалась верхняя часть раствора со значительным процентным содержанием одиночных нанотрубок. Более подробно процедура приготовления и характеристики подобного раствора описаны в [6].

На рис.1 приведен спектр коэффициента поглощения взвеси ОУН в D_2O . Полоса с максимумом на $\lambda \sim 2$ мкм (рис.1,а) связана с поглощением в тяжелой воде. Из рис.1,б видно, что длина волны $\lambda = 1.54$ мкм примерно соответствует максимуму поглощения одного из типов углеродных нанотрубок.

Была измерена зависимость пропускания кюветы, заполненной взвесью ОУН в D_2O , от интенсивности излучения на $\lambda = 1.54$ мкм. Толщина зазора кюветы $L = 100$ мкм, пропускание в слабом поле составляло 78.5 % (торцы кюветы не просветлялись, их пропускание было равно 93 %), пропускание слоя с ОУН – 84.4 %. Измерения проводились с помощью лазера на стекле, активиро-

Н.Н.Ильичев, С.В.Гарнов, С.Е.Мосалева. Институт общей физики им. А.М.Прохорова РАН, Россия, 119991 Москва, ул. Вавилова, 38
Е.Д.Образцова. Центр естественно-научных исследований при Институте общей физики РАН им. А.М.Прохорова, Россия, 119991 Москва, ул. Вавилова, 38

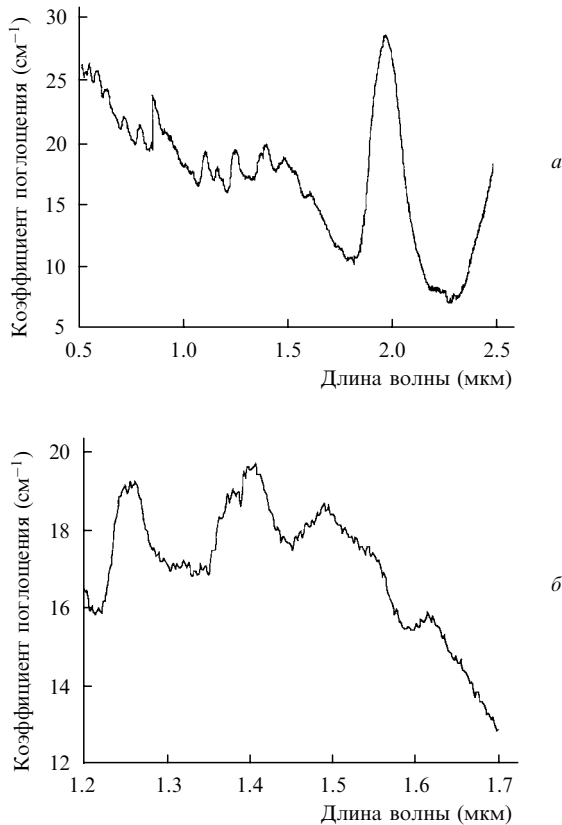


Рис.1. Спектры коэффициента поглощения взвеси ОУН в D₂O в областях 0.5–2.5 мкм (а) и 1.2–1.7 мкм (б). Толщина кюветы 100 мкм.

ванном ионами Er³⁺, работавшего в режиме активной модуляции добротности, которая осуществлялась электрооптическим затвором на основе ниобата лития. Энергия в импульсе генерации составляла 3.0–3.5 мДж, длительность импульса излучения на полувысоте равнялась 250 нс, поперечное распределение излучения соответствовало TEM₀₀-моду.

Пропускание кюветы определялось как отношение энергии импульса, прошедшего через кювету, к энергии падающего импульса. Падающее излучение фокусировалось с помощью линзы с фокусным расстоянием 30 см. Кювета помещалась на разных расстояниях от линзы, что давало возможность изменять диаметр пучка излучения в кювете, а следовательно, и его интенсивность. В условиях эксперимента отношение площади поперечного сечения пучка к площади перетяжки изменялось более чем на два порядка. Измерялась также зависимость радиуса гауссова пучка от продольной координаты. Примененный способ изменения интенсивности излучения позволил снизить влияние на точность измерений нестабильности энергии излучения зондирующего импульса.

На рис.2 приведена зависимость пропускания кюветы, заполненной раствором с нанотрубками, от пиковой интенсивности излучения на входе в кювету. Отметим, что изменение коэффициента поглощения при интенсивности на входе в кювету 40 МВт/см² составило 3.6 см⁻¹ при коэффициенте поглощения в слабом поле около 17 см⁻¹. При увеличении интенсивности значительно возрастает разброс измеренных значений пропускания, а также наблюдается уменьшение пропускания от 81.4 % (40 МВт/см²) до 79.5 % (80 МВт/см²) что, возможно, связано с образованием парогазового пузыря в кювете в месте прохождения излучения.

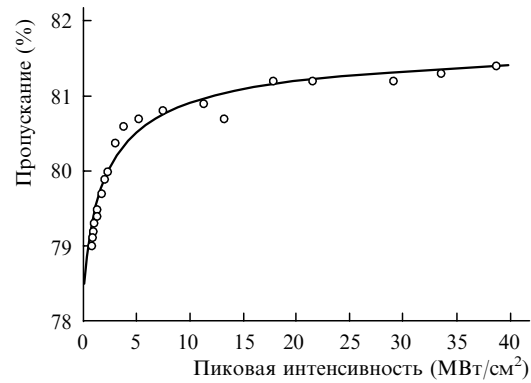


Рис.2. Зависимость коэффициента пропускания кюветы с ОУН от пиковой интенсивности излучения на входе в кювету. Точки – эксперимент, сплошная кривая – расчет.

Расчет зависимости пропускания от пиковой интенсивности проводился на основе следующего уравнения, описывающего распространение импульса в среде:

$$\frac{dI}{dz} = -(\alpha_0 - \Delta\alpha)I - \Delta\alpha \frac{I}{1 + I/I_s}, \quad (1)$$

где I_s – интенсивность насыщения поглощения; $\alpha_0 = 17 \text{ см}^{-1}$ – коэффициент поглощения взвеси в слабом поле; $\Delta\alpha$ – изменение коэффициента поглощения за счет насыщения поглощения. Поскольку длительность импульса лазера была значительно больше времени релаксации возбужденного состояния [10, 11], то при расчете было принято, что коэффициент поглощения определяется мгновенным значением интенсивности излучения. Второй член в правой части выражения (1) феноменологически описывает известный эффект насыщения поглощения. Так как в нашем случае $\alpha_0 L \approx 0.15 \ll 1$, то в качестве первого приближения для решения уравнения (1) можно принять значение функции I в правой его части равным интенсивности на входе в кювету. В этом приближении легко получить искомое решение. Учитывая, что поперечное распределение падающего излучения является гауссовым, а также считая временную форму импульса прямоугольной с длительностью 250 нс, можно получить приближенное выражение для зависимости пропускания кюветы T от пиковой интенсивности импульса I_0 :

$$T(I_0) = T_s^2 \times \exp \left\{ -\alpha_0 L - \Delta\alpha L \left[-1 + \frac{I_s}{I_0 T_s} \ln \left(1 + \frac{I_0 T_s}{I_s} \right) \right] \right\}, \quad (2)$$

где $T_s = 0.96$ – пропускание одного из торцов кюветы. При $I_s = 10^6 \text{ Вт/см}^2$ и $\Delta\alpha = 4.0 \text{ см}^{-1}$ формула (2) наилучшим образом описывает экспериментальные данные.

3. Пассивная модуляция добротности и самосинхронизация мод лазера на стекле с Er³⁺ с помощью кюветы с ОУН

Кювета с ОУН была использована в качестве пассивного затвора в лазере на стекле, активированном ионами Er³⁺. Резонатор лазера длиной 76 см был образован двумя зеркалами с радиусом кривизны 1 м. В резонаторе находилась ирисовая диафрагма для выделения TEM₀₀-моды, активный элемент диаметром 4 мм и

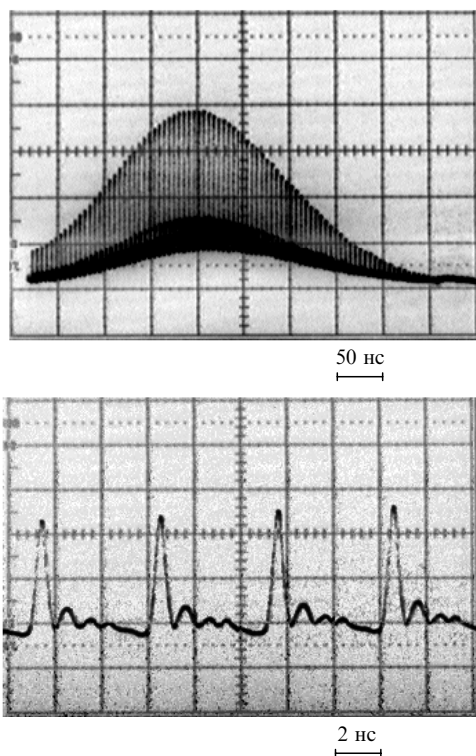


Рис.3. Импульсы генерации лазера на стекле, активированном эрбием, с пассивным затвором на основе ОУН.

длиной 80 мм и кювета с ОУН, расположенная вблизи одного из зеркал резонатора. Толщина зазора кюветы $L = 100$ мкм, а начальное пропускание слоя с ОУН на длине волны генерации составляло 84.4 %. Регистрация временной формы импульса излучения проводилась с помощью фотодиода ЛФД-2а и осциллографа типа Tektronix 7104, что обеспечивало временное разрешение ~ 1 нс.

На рис.3 представлены осциллограммы импульсов генерации при скоростях развертки 50 и 2 нс/дел. Видно, что временная структура выходного излучения с общей длительностью около 200 нс имеет вид последовательности коротких (длительность менее 1 нс) одиночных импульсов с периодом следования, равным времени обхода резонатора, что указывает на реализацию режима самосинхронизации мод.

4. Заключение

Таким образом, в настоящей работе исследована зависимость пропускания ОУН, взвешенных в D_2O , от интенсивности излучения на $\lambda = 1.54$ мкм. При длительности импульса 250 нс и максимальной интенсивности на входе в кювету 40 МВт/см² уменьшение коэффициента поглощения составило 3.6 см⁻¹ при коэффициенте поглощения в слабом поле около 17 см⁻¹. Эти значения можно

сравнить с коэффициентами поглощения, приведенными на рис.1,б, где высоту «пьедестала», который не просветлялся при использовавшихся интенсивностях излучения, можно оценить как $13-14$ см⁻¹, а просветляющуюся часть поглощения, по-видимому, можно отождествить с пиком поглощения на $\lambda \sim 1.5$ мкм. Оценка интенсивности насыщения поглощения I_s дала 10^6 Вт/см².

Получен режим модуляции добротности и самосинхронизации мод лазера на стекле с ионами Eg^{3+} при использовании в качестве пассивного затвора кюветы с ОУН, взвешенными в D_2O . Длительность импульсов при синхронизации мод была менее 1 нс, что определялось временным разрешением использовавшейся регистрирующей аппаратуры.

Авторы выражают свою благодарность У.Деттлаф-Вегликовской за предоставление необработанного NiPCO-материала, А.Л.Мулюкину – за проведение ультрацентрифугирования, Г.А.Буфетовой – за измерение спектров пропускания взвесей ОУН и Л.А.Кулевскому – за предоставленную кювету для модуляции добротности.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (гранты № 03-02-17316а и 04-02-17618а) и исследовательской программы Президиума РАН «Оптическая спектроскопия и стандарты частоты».

- O'Connell M.J., Bachilo S.M., Huffman C.B., Moore V.C., Strano M.S., Harotz E.H., Rialon K.L., Boul P.J., Noon W.H., Kittrell C., Ma J., Hauge R.H., Weisman R.B., Smalley R.E. *Science*, **297**, 593 (2002).
- Avouris P. *Acc. Chem. Res.*, **35**, 1026 (2002).
- Bachilo S.M., Strano M.S., Kittrell C., Hauge R.H., Smalley R.E., Weisman R.B. *Science*, **298**, 593 (2002).
- Hagen A., Hertel T. *Nano Letters*, **3**, 383 (2003).
- Strano M.S., Duke C.A., Usrey M.L., Barone P.W., Allen M.J., Shan H., Kittrell C., Hauge R.H., Tour J.M., Smalley R.E. *Scienc*, **301**, 1519 (2003).
- Obraztsova E.D., Fujii M., Hayashi S., Lobach A.S., Vlasov I.I., Khomich A.V., Timoshenko V.Yu., Wenseleers W., Goovaerts E. In: *Nanoengineered Nanofibrios Materials*. Ed. by S.Cuceri, Y.Gogotsi, V.Kuznetsov (Dordrecht: Kluwer Acad. Publ., 2004, vol. 169, pp 389–398).
- Dresselhaus M.S., Dresselhaus G., Eklund P.S. *Science of Fullerenes and Carbon Nanotubes* (San Diego, CA: Acad. Press, 1996).
- Bronikowski M.J., Willis P.A., Crobert D.T., Smith K.A., Smalley R.E. *J. Vac. Sci. Technol.*, **19**, 1800 (2001).
- Saito R., Dresselhaus M.S., Dresselhaus G. *Physical Properties of Carbon Nanotubes* (London: Imperial College Press, 1998).
- Hagen A., Moos G., Talalae V., Tomm J.W., Hertel T. *Appl. Phys. A*, **78** (8), 1137 (2004)..
- Ostojic G.N., Zaric S., Kono J., Strano M.S., Moore V.C., Hauge R.H., Smalley R.E. *Phys. Rev. Lett.*, **92**, 117402-1 (2004).
- Set S.Y., Yaguchi H., Jablonski M., Tanaka Y., Sakakibara Y., Rozhin A., Tokumoto M., Kataura H., Achiba Y., Kikuchi K. *Book of Abstr. of OFC'03* (Atlanta, Georgia, USA, 2003, PDP44); <http://laser.phys.metro-u.ac.jp/Doc/OFC 2003-PDP-Laser4.pdf>.
- Nikolaev P., Bronikovski M.J., Bradley R.K., Rohmund F., Colbert D.T., Smith K.A., Smalley R.E. *Chem. Phys. Lett.*, **313**, 91 (1999).