

## Самосинхронизация мод в эрбиевых волоконных лазерах с насыщающимися поглотителями в виде полимерных плёнок, содержащих синтезированные методом дугового разряда одностенные углеродные нанотрубки

А.В.Таусенев, Е.Д.Образцова, А.С.Лобач, А.И.Чернов,  
В.И.Конов, А.В.Конященко, П.Г.Крюков, Е.М.Дианов

*Исследованы кольцевая и линейная схемы эрбиевых волоконных лазеров, в которых пассивная синхронизация мод достигалась с помощью насыщающихся поглотителей в виде плёнок высокого оптического качества на основе производных целлюлозы с диспергированными одностенными углеродными нанотрубками. Плёнки были изготовлены по оригинальной методике с использованием нанотрубок, синтезированных методом дугового разряда. Исследования показали, что они обладают нелинейным поглощением на длине волны 1.5 мкм. В кольцевой схеме эрбиевого лазера получена генерация импульсов, имеющих форму оптических солитонов, длительностью 1.17 пс и с длиной волны 1.557 мкм. При накачке излучением диода мощностью 25 мВт на длине волны 980 нм средняя мощность составляла 1.1 мВт при частоте следования импульсов 20.5 МГц. В линейной схеме длительность импульсов удалось сократить до 466 фс при выходной мощности до 4 мВт и частоте следования 28.5 МГц. Отличительной особенностью исследованных лазеров является низкий порог накачки в режиме генерации ультракоротких импульсов.*

**Ключевые слова:** самосинхронизация мод, эрбиевый волоконный лазер, солитоны, углеродные нанотрубки.

Одностенные углеродные нанотрубки (ОУН) являются новым наноматериалом с замечательными физическими свойствами, список которых недавно пополнился обнаруженной способностью ОУН к насыщению поглощения лазерного излучения с длинами волн в ближнем ИК диапазоне [1–3]. Продемонстрирована возможность самосинхронизации мод в твердотельных лазерах с различными длинами волн излучения при использовании жидких [3–5] и пленочных [1, 2, 6, 7] ОУН-элементов. В волоконных лазерах, работающих в режиме пассивной синхронизации мод, в качестве насыщающихся поглотителей с успехом использовались пленочные элементы, причем как композитные пленки ОУН + полимер [6], так и синтезированные или осажденные на кварцевую подложку пленки, состоящие только из ОУН [1, 2]. По сравнению с другими методами реализации режима самосинхронизации мод в лазерах этого типа, такими как нелинейный поворот эллипса двойного лучепреломления [8–10] или использование насыщающегося поглотителя на основе полупроводников [11, 12], применение ОУН даёт определённые преимущества, позволяя с помощью относительно простых и доступных технологий создавать волоконные лазеры с низким порогом мощности накачки. Кроме того, ОУН обладают широким рабочим спектральным диапазоном и высокой лучевой стойкостью.

Оптические характеристики плёнок, содержащих ОУН, существенно зависят от способов синтеза нанотрубок. Поэтому разработка технологии изготовления образцов ОУН с оптическими характеристиками, необходимыми для работы волоконных лазеров ультракоротких импульсов, является важной и актуальной задачей.

В настоящей работе предложен новый способ изготовления плёнок, содержащих ОУН, с помощью которых были созданы и исследованы эрбиевые волоконные лазеры субпикосекундных импульсов с низким уровнем мощности накачки.

Принципиально важным моментом в достижении оптического качества сред, содержащих нанотрубки, является дезинтеграция пучков ОУН, которые чаще всего формируются в процессе синтеза. Обычно пучок состоит из 10–100 нанотрубок с различными диаметрами, а следовательно, и с различной шириной запрещенной зоны – от 1.4 эВ до 0 (в металлических нанотрубках) [13]. Отдельные трубки в пучке взаимодействуют за счет сил Ван-дер-Ваальса, а сам пучок является хорошо упорядоченной структурой, демонстрирующей характерные рефлексы одномерного кристалла на рентгеновских дифрактограммах. Разбиение пучков эффективно осуществляется мощной ультразвуковой обработкой ОУН в растворе в присутствии молекул поверхностно-активного

**А.В.Таусенев.** Научный центр волоконной оптики РАН, Россия, 119991 Москва, ул. Вавилова, 38; Физический институт им. П.Н.Лебедева РАН, Россия, 119991 Москва, Ленинский просп., 53; e-mail: tausenev@fo.gpi.ru

**Е.Д.Образцова, В.И.Конов.** Центр естественно-научных исследований Института общей физики им. А.М.Прохорова РАН, Россия, 119991 Москва, ул. Вавилова, 38; e-mail: elobr@kapella.gpi.ru

**А.С.Лобач.** Институт проблем химической физики РАН, Россия, 123182 Черноголовка, Московская обл.

**А.И.Чернов.** Центр естественно-научных исследований Института общей физики им. А.М.Прохорова РАН, Россия, 119991 Москва, ул. Вавилова, 38; Московский государственный университет им. М.В.Ломоносова, физический факультет, Россия, 119992 Москва, Воробьевы горы

**А.В.Конященко.** Физический институт им. П.Н.Лебедева РАН, Россия, 119991 Москва, Ленинский просп., 53; ООО «Авеста-Проект», Россия, 142190 Троицк, Московская обл., ул. Солнечная, 12

**П.Г.Крюков, Е.М.Дианов.** Научный центр волоконной оптики РАН, Россия, 119991 Москва, ул. Вавилова, 38

вещества (ПАВ) с последующим ультрацентрифугированием и выделением наиболее легкой верхней фракции [14].

Способ взаимодействия ПАВ с поверхностью нанотрубки и его эффективность определяют концентрацию одиночных ОУН, остающихся в растворе. Ранее был проведен анализ различных ПАВ [15, 16] и осуществлен выбор наиболее эффективных из них. Использование концентрированных водных суспензий ОУН обеспечило режим самосинхронизации мод в лазерах с объемными элементами [3–5]. При формировании пленок из водорастворимых полимеров (поливиниловый спирт) мы применяли такие суспензии в качестве растворителей для полимерной компоненты.

В настоящей работе использован принципиально новый тип полимера – производные целлюлозы, в частности карбоксиметилцеллюлоза (КМЦ). Преимущество этого вещества заключается в том, что оно одновременно является и ПАВ с высокой эффективностью диспергирования нанотрубок [17], и средой, образующей пленку при высыхании суспензии. Таким образом, в полученном материале число компонентов сокращается до двух: ОУН и полимер. В пленках на основе других водорастворимых полимеров компонентов обычно три – ОУН, ПАВ и полимер. Присутствие в пленке дополнительных компонентов повышает уровень потерь за счет ненасыщающей части оптического поглощения и снижает эффективность работы нелинейно-оптического элемента.

При использовании пленок с ОУН для волоконных лазеров, требующих минимизации потерь в веществе матрицы, в которой диспергированы ОУН, актуальным становится еще одно преимущество КМЦ – возможность получения на ее основе существенно более тонких (6–8 мкм) однородных пленок, чем на основе, например, поливинилового спирта.

Насколько нам известно, в нашей работе впервые реализован насыщающийся поглотитель на основе целлюлозы. Кроме того, новшеством является использование ОУН, синтезированных методом дугового разряда. «Дуговые» нанотрубки имеют полосы поглощения, сдвинутые в ИК область существенно дальше (до длин волн ~ 2.0 мкм), чем полосы нанотрубок, синтезированных другими методами (разложением газа СО при высоком давлении (HiPСО), методом лазерной абляции и т. д.).

Одностенные углеродные нанотрубки были синтезированы методом дугового разряда в атмосфере гелия при использовании Ni – Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-катализатора в заполняющей графитовый анод смеси C:Ni:Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> = 2:1:1. Ток дуги составлял 90 А [18].

Стабильные суспензии ОУН были приготовлены путем диспергирования неочищенной сажи, содержащей «дуговые» ОУН, в растворе КМЦ в легкой или тяжелой воде посредством ультразвуковой обработки с последующим ультрацентрифугированием при ускорении 150000g в течение 1 ч (центрифуга Optima Max-E Beckman-Coulter). Гомогенный раствор супернатанта представлял собой стабильную суспензию одиночных ОУН и использовался для приготовления пленок [15, 16].

Пленки оптического качества на основе КМЦ и одностенных углеродных нанотрубок, синтезированных методом дугового разряда, были получены методом полива на неподвижную подложку суспензии ОУН в однопроцентном (по массе) водном растворе натриевой соли КМЦ (средней вязкости, производство Sigma) с последу-

ющим медленным упариванием растворителя в сосуде. Толщина пленок варьировалась в интервале 10–100 мкм. Для получения пленок необходимой толщины с требуемой концентрацией ОУН варьировались соотношения объемов суспензии ОУН и чистого полимера.

Оптические свойства пленок в спектральном диапазоне 190–2200 нм были изучены с помощью спектрофотометра Shimadzu UV-3600. Распределение диаметров ОУН, присутствующих в пленке, оценивалось по характерным частотам «дыхательных» мод в низкочастотной области спектров комбинационного рассеяния (КР) света. Спектры измерялись с помощью тройного спектрометра Jobin-Yvon S-3000 при возбуждении излучением аргонового лазера с различными длинами волн. Было установлено, что в образце присутствуют нанотрубки с диаметрами 1.2–1.7 нм.

На рис.1 приведен спектр оптического поглощения в широком спектральном диапазоне пленки из КМЦ с диспергированными в ней дуговыми ОУН. На спектре четко видны полосы поглощения, соответствующие переходам между первыми, вторыми и т. д. симметричными сингулярностями ван Хофа в плотности электронных состояний ансамбля нанотрубок. Ширина полос определяется шириной распределения нанотрубок по диаметрам. Существенно более узкие пики соответствуют поглощению света одиночными нанотрубками различных геометрий [13]. Оптические переходы разрешены между симметричными сингулярностями. Рабочая длина волны эрбиевого лазера лежит в области первой полосы поглощения полупроводниковых нанотрубок.

Следует отметить, что для ОУН, диспергированных в КМЦ, положения пиков поглощения немного отличаются от положения тех же пиков в исходной суспензии. Это свойство может быть использовано в дальнейшем для подстройки спектра поглощения под конкретную длину волны волоконного лазера.

Насыщаемое поглощение пленок из карбоксиметилцеллюлозы, содержащих ОУН, измерялось на длине волны 1.560 мкм методом z-сканирования с использованием фемтосекундного эрбиевого волоконного лазера EFO-150 («Авеста-проект»). Насыщаемое поглощение составило 2.6 % при пиковой интенсивности излучения

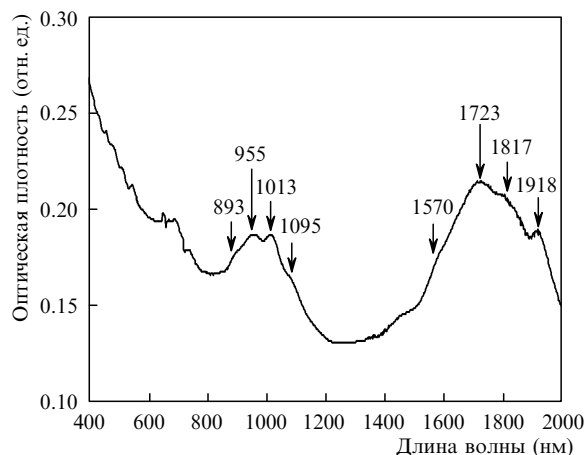


Рис.1. Спектр поглощения пленки карбоксиметилцеллюлозы, содержащей синтезированные дуговым методом гомогенно распределенные индивидуальные ОУН. Узкие пики поглощения, обозначенные стрелками, соответствуют переходам между первыми и вторыми сингулярностями ван Хофа в плотности одноэлектронных состояний ОУН.

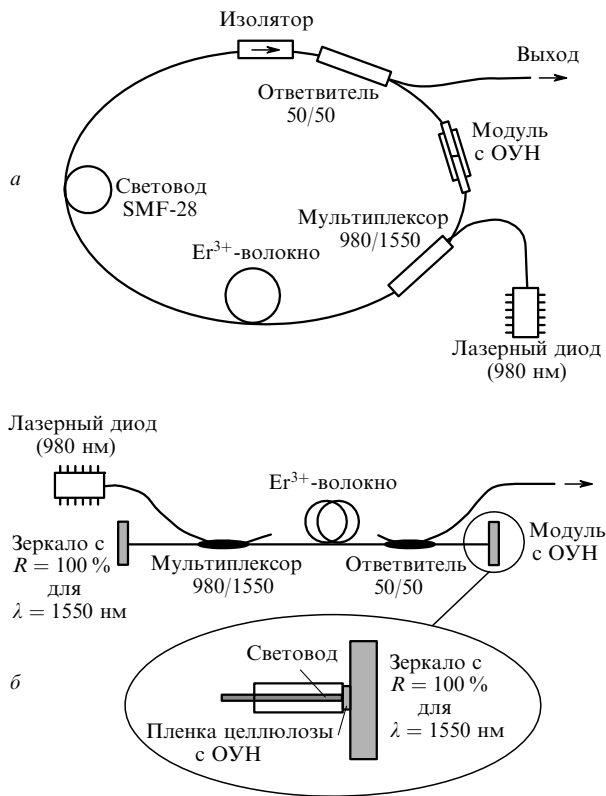


Рис.2. Схемы кольцевого (а) и линейного (б) эрбиевых волоконных лазеров.

2 МВт/см<sup>2</sup>. Такие плёнки использовались для реализации непрерывного режима синхронизации мод в эрбиевых волоконных лазерах. Схемы исследуемых лазеров показаны на рис.2. В кольцевой схеме плёнка помещалась между концами волокон в стандартном FC/APC-разъёме. Для предотвращения влияния паразитных отражений на режим синхронизации мод концы волокон были скошены под углом  $\sim 7^\circ$ . В линейной схеме плёнка прижималась торцом волокна к зеркалу со 100%-ным коэффициентом отражения.

В кольцевой схеме в качестве активной среды использовалось эрбиевое волокно длиной 1.25 м, которое накачивалось через мультиплексор излучением диода с длиной волны 980 нм в направлении, попутном распространению лазерного излучения по кольцу. Для обеспечения однонаправленного режима генерации в схему помещался изолятор. Излучение, выходящее из эрбиевого волокна, проходило через ответвитель, который обеспечивал 50%-ный выход излучения; остальная его часть попадала на насыщающийся поглотитель. Модуль, содержащий ОУН, помещался непосредственно за выходным ответвителем с целью уменьшения мощности попадающего на него излучения. Для получения отрицательной дисперсии групповых скоростей (ДГС), нужной для формирования импульсов в форме солитонов, использовались отрезки волоконного световода SMF-28 длиной 8.5 м.

При мощности накачки 25 мВт получался стабильный режим генерации с одним импульсом на период обхода резонатора с выходной средней мощностью 1.1 мВт. При этом частота повторения импульсов составляла 20.5 МГц. Спектр и автокорреляционная функция интенсивности излучения кольцевого лазера показаны на рис.3. Видно, что они хорошо аппроксимируются функцией

$\text{sech}^2 x$ . Из результатов измерений следует, что  $\Delta\tau\Delta\nu = 0.3159$ , где  $\Delta\tau$  – длительность импульса,  $\Delta\nu$  – ширина спектра. Для спектрально-ограниченного импульса солитонной формы ( $\text{sech}^2 x$ ) эта величина составляет 0.3148. Таким образом, можно утверждать, что лазер работает в режиме генерации спектрально-ограниченных солитонных импульсов.

В линейной схеме использовалось эрбиевое волокно длиной 90 см, и отрезки световодов SMF-28 для компенсации ДГС. Один конец световода прижимался к зеркалу со 100%-ным отражением на  $\lambda = 1550$  нм, а другой – к такому же зеркалу, но через плёнку КМЦ, содержащую ОУН. При мощности накачки 40 мВт выходная мощность достигала 4 мВт при частоте повторения импульсов 28.5 МГц. На рис.4 показаны спектр и автокорреляционная функция интенсивности выходного излучения. Длительность импульса составляла 470 фс при ширине спектра 11 нм. Из этих данных следует, что импульсы обладают некоторым чирпом, что позволяет ожидать получения импульса ещё меньшей длительности при полной компенсации чирпа.

Таким образом, в данной работе создан эрбиевый волоконный лазер с кольцевой и линейной схемами резонаторов, генерирующий субпикосекундные импульсы при малой мощности накачки за счет использования насыщающихся поглотителей нового типа – полученных по разработанной нами оригинальной методике плёнок КМЦ с гомогенно диспергированными в них одностенными углеродными нанотрубками, синтезированными методом дугового разряда.

Работа поддержана грантами РФФИ № 04-02-17618, 06-02-08151-офи и программой Президиума РАН «Фемтосекундная оптика и новые материалы».

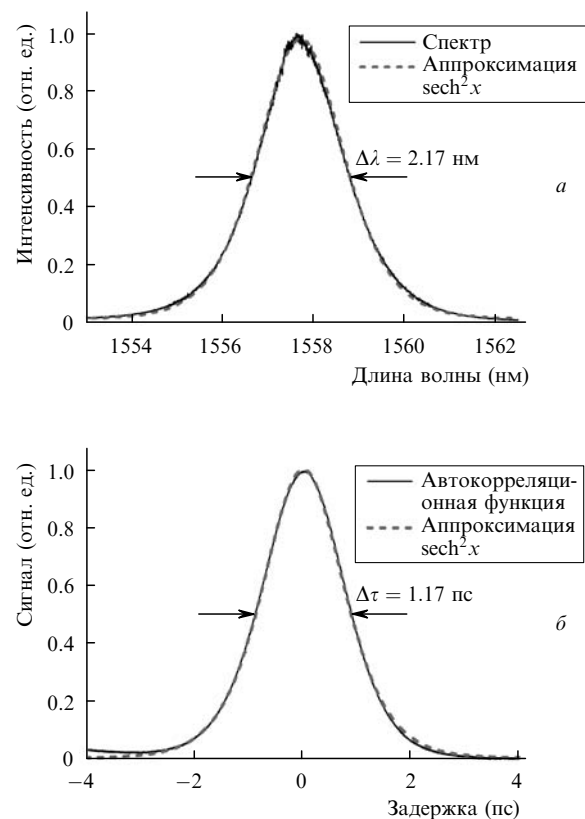


Рис.3. Спектр (а) и автокорреляционная функция интенсивности (б) излучения кольцевого лазера.

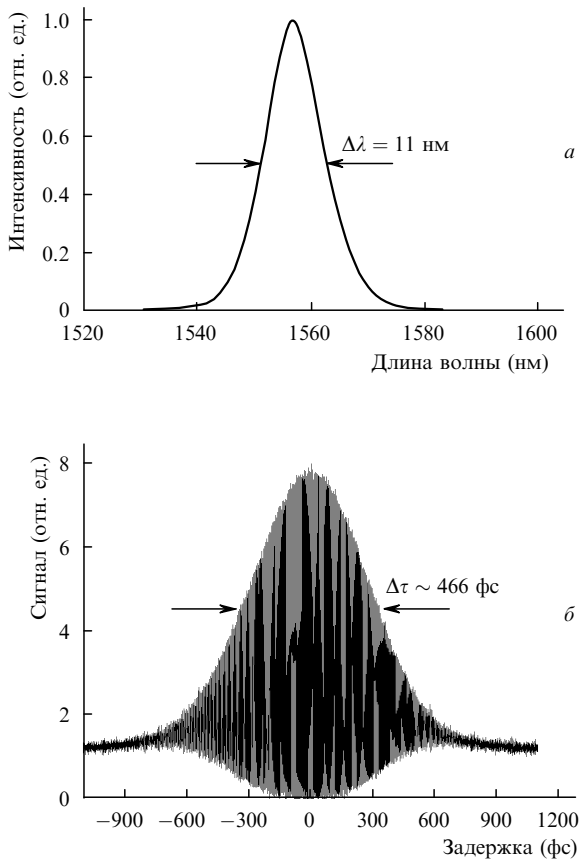


Рис.4. Спектр (а) и автокорреляционная функция интенсивности (б) излучения линейного лазера.

1. Set S.Y., Yaguchi H., Tanaka Y., Yablonski M., Sakakibara Y., Rozhin A., Tokumoto M., Kataura H., Achiba Y., Kikuchi K. *Book of abstracts OFC'03* (USA, OSA, PD44, 2003).

2. Yamashita S., Inoue Y., Maruyama S., Murakami Y., Yaguchi H., Yablonski M., Set S.Y. *Opt. Lett.*, **29**, 1581 (2004).

3. Ильичев Н.Н., Образцова Е.Д., Гарнов С.В., Мосалева С.Е. *Квантовая электроника*, **34**, 572 (2004).

4. Ильичев Н.Н., Образцова Е.Д., Пашинин П.П., Конов В.И., Гарнов С.В. *Квантовая электроника*, **34**, 785 (2004).

5. Il'ichev N.N., Garnov S.V., Obratsova E.D. *AIP Conferences Proceedings, Subseries: Materials Physics and Applications* (Dordrecht: Kluwer, 2005, Vol. 786, p. 611).

6. Rozhin A.G., Scardaci V., Wang F., Hennrich F., White I.H., Milne W.I., Ferrari A.C. *Phys. Stat. Sol. (b)*, **1–5**, 3551 (2006).

7. Schibli T.R., Minoshima K., Kataura H., Itoga E., Minami N., Kazaoui S., Miyashita K., Tokumoto M., Sakakibara Y. *Opt. Express*, **13**, 8025 (2005).

8. Hofer M., Fermann M.E., Haberl F., Ober M.H., Schmidt A.J. *Opt. Express*, **16**, 502 (1991).

9. Tamura K., Haus H.A., Ippen E.P. *Electron. Lett.*, **28**, 2226 (1992).

10. Таусенев А.В., Крюков П.Г. *Квантовая электроника*, **34** (2), 106 (2004).

11. Keller U. et al. *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.*, **2**, 435 (1996).

12. Okhotnikov O., Grudinin A., Pessa M. *New J. Phys.*, **6**, 177 (2004).

13. Dresselhaus M.S., Dresselhaus G., P. Avouris P. (Eds), in *Carbon Nanotubes: Synthesis, Structure, Properties and Applications* (Berlin – Heidelberg – New-York: Springer-Verlag, 2000).

14. O'Connell M.J., Bachilo S.M., Huffman C.B., Moore V.C., Strano M.I.S., Haroz E.H., Rialon K.L., Boul P.J., Noon W.H., Ma C.K.J., Hauge R.H., Weisman R.B., Smalley R.E. *Science*, **297**, 593 (2002).

15. Obratsova E.D., Fujii M., Hayashi S., Lobach A.S., Vlasov I.I., Khomich A.V., Timoshenko V.Yu., Wenseleers W., Goovaerts E., in *Nanoengineered Nanofibrous Materials, NATO Science Series II: Mathematics, Physics and Chemistry* (Dordrecht: Kluwer Acad. Publ., 2004, Vol. 169, p. 389–398).

16. Wenseleers W., Vlasov I.I., Goovaerts E., Obratsova E.D., Lobach A.S., Bouwen A. *Adv. Functional Mater.*, **14**, 1105 (2004).

17. Minami N., Kim Y., Miyashita K., Kazaoui S., Nalini B. *Appl. Phys. Lett.*, **88**, 093123 (2006).

18. Obratsova E.D., Bonard J.-M., Kuznetsov V.L., Zaikovskii V.I., Pimenov S.M., Pozharov A.S., Terekhov S.V., Konov V.I., Obratsova A.N., Volkov A.P. *Nanostructured Mater.*, **12**, 567 (1999).