

光纤气体激光光源研究进展及展望 (I): 基于受激拉曼散射

王泽锋^{1,2,3*}, 黄威^{1,2}, 李智贤^{1,2}, 周智越^{1,2}, 崔宇龙^{1,2}, 李昊^{1,3}

¹国防科技大学前沿交叉学科学院, 湖南 长沙 410073;

²脉冲功率激光技术国家重点实验室, 湖南 长沙 410073;

³高能激光技术湖南省重点实验室, 湖南 长沙 410073

摘要 空芯光纤为光与气体的相互作用提供了理想的环境,极大增强了气体的受激拉曼散射,大大降低了拉曼阈值。基于充气空芯光纤的光纤气体拉曼激光光源获得了快速发展,已经实现了从紫外到中红外波段的激光输出。简要介绍了光纤气体拉曼激光光源的基本原理和空芯光纤的发展概况,详细综述了光纤气体拉曼激光光源的研究进展,并对其发展的趋势进行了展望。

关键词 激光光学; 光纤激光; 拉曼散射; 拉曼激光; 气体激光; 空芯光纤

中图分类号 TN24

文献标识码 A

doi: 10.3788/CJL202148.0401008

1 引言

自 1963 年被首次报道^[1]以来,气体受激拉曼散射(Stimulated Raman Scattering, SRS)就被认为是实现激光波长拓展的有效手段,其波长可覆盖紫外至红外波段^[2-3]。然而,受限于激光与气体的有效作用距离,传统气体腔中实现受激拉曼散射的阈值非常高。尽管历史上出现过使用中空毛细管^[4]和高精度腔^[5]的方法,激光与气体的有效作用距离仍然较短。直到 1999 年,第一根空芯光纤(Hollow-core Fiber, HCF)的出现^[6]使得气体受激拉曼散射研究开始了新的方向。空芯光纤能够将激光约束在直径为微米量级的中空纤芯内进行长距离传输,因而极大地增加了激光与气体的有效作用长度和相互作用强度;同时空芯光纤的传输带可设计,因而能够抑制不需要的拉曼谱线的产生,提高到单一拉曼谱线的转化效率,使得高效的气体拉曼激光产生成为可能。2002 年, Benabid 等^[7]首次开展了空芯光纤内氢气受激拉曼散射实

验研究,开启了利用空芯光纤实现激光与气体相互作用的新纪元。近二十年以来,随着空芯光纤制作工艺的不断提高,光纤气体拉曼激光光源获得了蓬勃发展,各种增益气体的使用极大丰富了拉曼激光的输出波长。

本文首先简要介绍了光纤气体拉曼激光光源的基本原理、最常用的两类空芯光纤的研究进展和基本特点及空芯光纤对光纤气体拉曼激光光源的作用,重点介绍了国内外光纤气体拉曼激光光源的研究进展,分析总结了光纤气体拉曼激光光源的技术特点,并对其发展趋势进行了展望。

2 基本原理与空芯光纤概况

2.1 基本原理

光纤气体拉曼激光光源是随着空芯光纤的发展^[8-9]而发展起来的一类新型光源,利用空芯光纤内气体的受激拉曼散射实现激光波长转换。空芯光纤内填充不同的气体介质,可以实现不同波长的拉曼激光输出;同一气体介质利用不同振转能级跃迁的

收稿日期: 2020-04-22; 修回日期: 2020-05-20; 录用日期: 2020-06-11

基金项目: 国家自然科学基金面上项目(11974427, 12004431)、湖南省自然科学基金杰出青年科学基金项目(2019JJ20023)、脉冲功率激光技术国家重点实验室主任基金项目(SKL-2020-ZR05)

*E-mail: zefengwang_nudt@163.com

受激拉曼散射,也可以实现不同波长的拉曼激光输出。图 1 以氢气分子为例,给出了气体分子受激拉曼散射的能级跃迁示意图,其中 V 代表分子的振动能级, J 代表分子的转动能级。可以看到,根据拉曼散射过程能级的变化,氢分子存在频移系数为 $\sim 4155\text{ cm}^{-1}$ 的振动受激拉曼散射,以及频移系数分别为 $\sim 587\text{ cm}^{-1}$ 、 $\sim 354\text{ cm}^{-1}$ 和 $\sim 814\text{ cm}^{-1}$ 的转动受激拉曼散射,选用不同波长的激光器作为泵浦源,可以实现近红外到中红外的激光输出。此外,利用同一泵浦源,也可以通过选用不同的气体实现不同波段的激光输出。

光纤气体拉曼激光光源的典型实验结构如图 2

所示,其包含泵浦源、反射镜片、透镜组、空芯光纤以及气体腔。泵浦源一般为高峰值功率固体激光器或者光纤激光器。反射镜片和透镜组的作用是将泵浦激光束准直聚焦并耦合进入空芯光纤纤芯内,空芯光纤两端密封于特殊设计的且含输入/输出玻璃窗口的气体腔中,增益气体介质通过管道可以进入气体腔进而进入到空芯光纤内,玻璃窗口使得泵浦激光能够照射到密封于气体腔内部空芯光纤端面,进而激光耦合进入空芯光纤内部。泵浦激光在空芯光纤内部传输时不断与气体介质发生受激拉曼散射作用,在泵浦超过阈值的情况下,空芯光纤输出端最终实现拉曼激光输出。

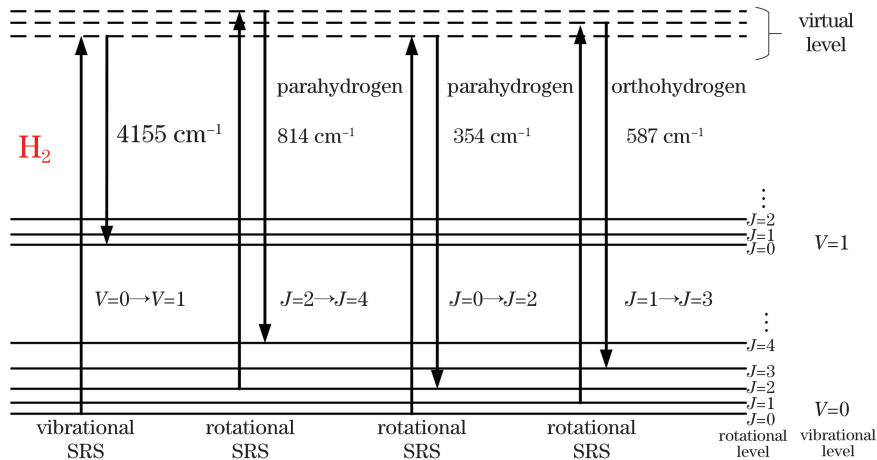


图 1 氢分子受激拉曼散射过程中的能级跃迁图

Fig. 1 Energy level transition diagram of hydrogen molecule during stimulated Raman scattering

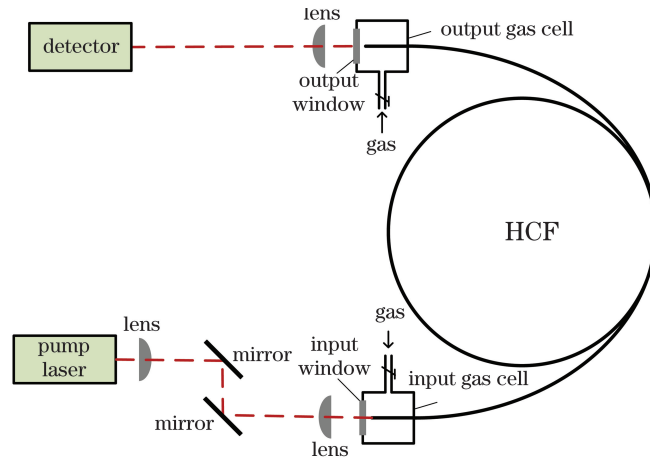


图 2 光纤气体拉曼激光光源典型实验结构示意图

Fig. 2 Schematic of typical experimental setup of fiber gas Raman laser source

2.2 空芯光纤概况

空芯光纤是光纤气体拉曼激光光源的核心部件,为气体受激拉曼散射提供了理想的环境,其性能参数对激光输出特性起着决定性的影响:空芯光纤的传输

带范围影响拉曼激光的输出波长,传输损耗影响拉曼激光转化效率,纤芯直径影响拉曼阈值,损伤阈值影响气体拉曼的极限功率,抗弯曲能力影响激光源系统的体积。因此,空芯光纤制备工艺的改进和性能的提

升,将极大地促进光纤气体拉曼激光光源的发展。

空芯光纤与实芯光纤不同,其纤芯中空,因而在实际应用中,纤芯可充入气体、液体或者微粒,用以开展不同的研究。一般情况下,纤芯内部为空气,其折射率小于包层石英介质,激光在空芯内的传输不再满足全反射原理,此时空芯光纤内的激光传输主要有两种机理,分别为光子带隙效应和反共振反射原理。据此可将空芯光纤大体上分为两类:一类是基于光子带隙效应的带隙型空芯光纤,另一种是基于反共振反射原理的反共振空芯光纤。

2.2.1 带隙型空芯光纤

如图 3 所示,带隙型空芯光纤(Photonic Band Gap Hollow-core Fibers, PBG-HCFs)的特点是纤芯周围的包层分布着周期性的空气孔,这种周期性结构形成了二维的光子带隙,因为波长位于带隙内的光无法通过周期性的空气孔而是被反射回纤芯区域,所以带隙型空芯光纤能够起到约束激光在纤芯

区域内传输的作用。1999 年,Cregan 等^[6]报道了第一根带隙型空芯光纤,其端面结构如图 3(a)所示。当时长度仅有几十厘米,但空芯光纤已经在激光传输、激光与物质相互作用及非线性抑制等方面表现出巨大的潜在价值,因此引起了人们极大的关注。2003 年,美国康宁公司报道了传输损耗小于 30 dB/km 的带隙型空芯光纤,其中 1550 nm 通信波长的损耗低至 13 dB/km^[10],光纤的横截面如图 3(b)所示。随后英国 Bath 大学的研究进一步降低了光纤损耗,获得了 1.72 dB/km(在 1565 nm 处)^[11]和 1.2 dB/km(在 1620 nm 处)^[12]的结果。纤芯模和表面模之间的耦合^[10]以及纤芯边界表面粗糙度引起的散射^[11]是影响带隙型空芯光纤损耗的重要因素,此后带隙型空芯光纤的研究针对于上述问题,主要朝着保持低损同时增加传输带宽的方向发展^[13-16],以提高应用价值。图 3(c)展示了带宽为 458 nm 的宽带带隙型空芯光纤^[16],其中 SEM 为扫描电镜。

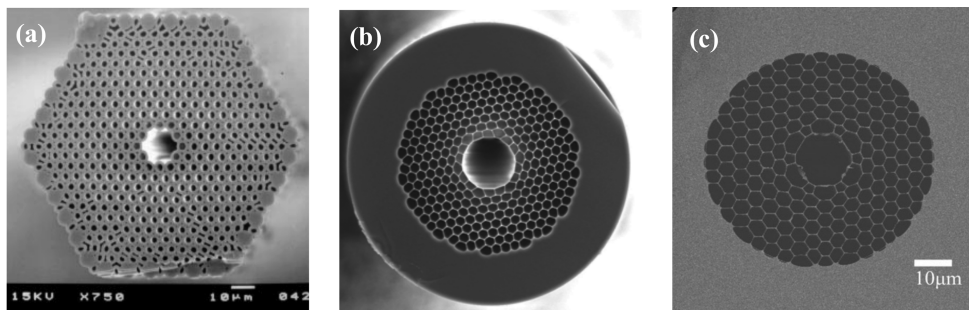


图 3 带隙型空芯光纤 SEM 图。(a)第一根 PBG-HCF^[6]; (b)低损耗 PBG-HCF^[11]; (c)宽带 PBG-HCF^[16]

Fig. 3 SEM images of PBG-HCFs. (a) First PBG-HCF^[6]; (b) low loss PBG-HCF^[11]; (c) broadband PBG-HCF^[16]

光子带隙型空芯光纤的特点是近红外波段的传输损耗和弯曲损耗较小,目前商用的带隙型空芯光纤的损耗一般均在 100 dB/km 以下。另外,带隙型空芯光纤的纤芯直径较小(相对反共振空芯光纤而言),纤芯内激光能量密度较高,因而能够降低气体受激拉曼散射总泵浦功率阈值,更容易实现拉曼激光输出。因此,带隙型空芯光纤一般能够实现高效的拉曼转化,甚至能实现连续光的拉曼激光输出。但是,由于受光子带隙特点的影响,带隙型空芯光纤存在传输带宽较窄及难以用于传输非近红外波段光的问题,这限制了带隙型空芯光纤在其他波段的应用,目前基于带隙型空芯光纤的光纤气体拉曼激光光源仅在 1.1 μm 和 1.7 μm 波段有相关的报道。

2.2.2 反共振空芯光纤

反共振空芯光纤(Anti-Resonance Hollow-core Fibers, AR-HCFs)与带隙型空芯光纤有很大的区别。反共振空芯光纤的传输机理是基于反共振反射

光波导(ARROW)的理论^[17],该理论认为构成纤芯边界的微结构薄壁类似于一个法布里-珀罗谐振腔(F-P 腔),满足腔内共振条件的光将十分容易从纤芯泄露到微结构薄壁中,而对于无法在腔内形成共振的光,F-P 腔对其有反共振反射的作用,抑制光从纤芯泄露到包层中。因此,反共振空芯光纤具有多个传输带的特性,传输带之间的高损耗区为共振波长区域,传输带内为非共振波长区域,而共振波长则由纤芯边界的壁厚决定。反共振空芯光纤 SEM 图如图 4 所示。

2002 年首次报道的 Kagome 型空芯光纤^[7]是第一款反共振空芯光纤,由于具有不完整的光子带隙,Kagome 型空芯光纤存在较宽的传输带和较高的传输损耗^[24]。图 4(a)为内摆线型 Kagome 型空芯光纤,负曲率纤芯边界设计使得光纤的传输损耗得到下降^[18]。后续研究发现,影响光纤传输性能的因素主要是包围纤芯的首圈微结构薄壁,于是空芯

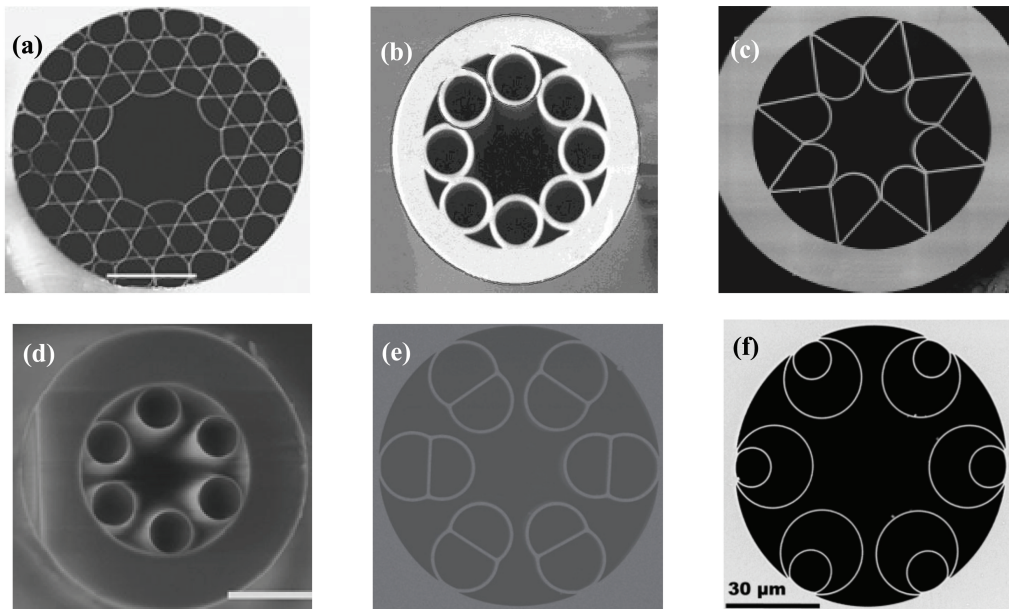


图 4 反共振空芯光纤 SEM 图。(a) Kagome 型空芯光纤^[18]；(b)有节点转轮型空芯光纤^[19]；(c)冰激凌型空芯光纤^[20]；(d)无节点转轮型空芯光纤^[21]；(e)空芯连体光纤^[22]；(f)嵌套型空芯光纤^[23]

Fig. 4 SEM images of AR-HCFs. (a) Kagome HCF^[18]；(b) revolver type HCF with nodes^[19]；(c) ice-cream type HCF^[20]；(d) nodeless revolver type HCF^[21]；(e) conjoined-tube HCF^[22]；(f) nested HCF^[23]

光纤开始简化^[25]，陆续出现了仅有一圈空气层的反共振空芯光纤，如图 4(b)~(f)所示。图 4(b)为 2011 年报道的有节点的转轮型空芯光纤，其纤芯由互相接触构成节点的玻璃毛细管包围组成，实验测量表明，该光纤在中红外波段的损耗要远低于硅玻璃实芯光纤^[19]。图 4(c)为冰激凌型空芯光纤，其具有中红外的传输窗口，在 3050 nm 处的最低损耗为 34 dB/km^[20]。图 4(d)为无节点转轮型空芯光纤。相比于图 4(b)的光纤，图 4(d)的空芯光纤包层毛细管接触点的消除有助于降低弯曲损耗，减少传输谱上的共振峰数量^[21]。图 4(e)和图 4(f)分别为连体型和嵌套型空芯光纤，相比于图 4(d)，这两种结构设计均是为了增强微结构薄壁的反共振反射作用，以获得更低的传输损耗。图 4(e)为 2018 年报道的空芯光纤，在 1512 nm 处的最小传输损耗为 2 dB/km，在 1302 ~ 1637 nm 通信波段内的损耗低于 16 dB/km^[22]。图 4(f)为 2019 年报道的超低损耗空芯光纤，在 C 通信波段(1530~1565 nm)和 L 通信波段(1565~1625 nm)的损耗低至 0.65 dB/km^[23]。目前来说，Kagome 型、冰激凌型和无节点转轮型空芯光纤是光纤气体拉曼激光光源最为常用的空芯光纤。

由于导光机理不同，与带隙型空芯光纤相比，反共振空芯光纤的传输带宽较宽，并且其传输带范围可通过改变光纤微结构的薄壁壁厚来灵活设计，因而反共振空芯光纤是光纤气体拉曼激光光源主要使

用的光纤类型，尤其是在中红外领域。传输带范围在紫外、可见光的 Kagome 反共振空芯光纤以及传输带在近、中红外的冰激凌型和无节点型反共振空芯光纤的应用，实现了紫外至中红外气体拉曼激光输出。需要注意的是，由于反共振空芯光纤的纤芯直径较大（一般大于 30 μm），因而相比于带隙型空芯光纤，基于反共振空芯光纤的气体受激拉曼散射的阈值相对较高，到目前为止仍没有连续拉曼激光的报道。

3 光纤气体拉曼激光光源的研究进展

光纤气体拉曼激光光源很好结合了光纤激光器和气体激光器的优势。相对传统的实芯光纤激光器，其在增益气体介质的选择方面更灵活，因此输出的激光波长非常丰富。同时，光纤中类高斯光束的场分布使得空芯边沿石英玻璃处的能量密度远小于空芯中心处的能量密度，大大提升了光纤的损伤阈值，因此在高功率输出方面具有巨大潜力。此外，由于气体介质的非线性效应（与激光线宽展宽相关）非常弱，因此光纤气体拉曼激光光源在高峰值功率下的窄线宽输出方面有巨大优势。研究者使用氢气、氙气和甲烷等气体为拉曼介质，实现了紫外至中红外各个波段的光纤气体拉曼激光输出。表 1 给出了目前已报道的在光纤气体拉曼激光光源中使用过的气体及其拉曼频移系数，包括在常用泵浦激光作用下产生的一阶斯托克斯激光的波长。

表 1 常用气体的 Raman 频移系数以及一阶 Stokes 波长

Table 1 Raman frequency shifts of common gases and their first-order Stokes wavelengths

Gain gas	Raman frequency shift / cm^{-1}	Stokes wavelength pumpd at 1064 nm /nm	Stokes wavelength pumpd at 1550 nm /nm
H_2	4155	1907	4354
	587	1135	1705
	354	1106	1640
D_2	2987	1560	2886
	415	1113	1657
	297	1098	1625
	179	1084	1594
CH_4	2917	1543	2829
C_2H_6	2954	1552	2859
CO_2	1389	1249	1975
CF_4	908	1178	1804
SF_6	775	1160	1762

3.1 氢气拉曼激光光源

在气体受激拉曼散射中,氢气是最为常用的气体介质之一。氢分子是质量最小的双原子分子,相比于其他气体分子,具有十分简单的振转能级结构以及较大的能级间距。因此对于受激拉曼散射,氢分子具备较高的拉曼增益系数以及较大的拉曼频移系数,如图 1 所示。拉曼增益系数较高意味着容易实现拉曼激光输出;拉曼频移系数大意味着可实现激光波长的大范围转换。因此,在光纤气体拉曼光源中,氢气是最早也是最常使用的气体介质。基于空芯光纤内氢气的受拉曼散射研究在紫外、可见光和近中红外等波段内均有

大量的报道,下面介绍氢气拉曼激光光源的主要研究进展。

历史上第一个光纤氢气拉曼激光光源工作于可见光波段,于 2002 年由 Benabid 等^[7]报道,如图 5 所示。该报道基于不含谐振腔的单程结构实现了拉曼激光输出,在此后的光纤气体拉曼激光光源的报道中,大多数的实验系统采用的是此类空间耦合的单程结构。其系统结构如图 5(a)所示,实验使用的 Kagome 型空芯光纤的两端被密封于气体腔内,该气体腔装嵌有镀抗反射膜的玻璃窗口,通过气体腔向空芯光纤内部充入 1.7 MPa 左右的氢气。泵浦源是 532 nm 调 Q 单模倍频 Nd:YAG 激光器,其

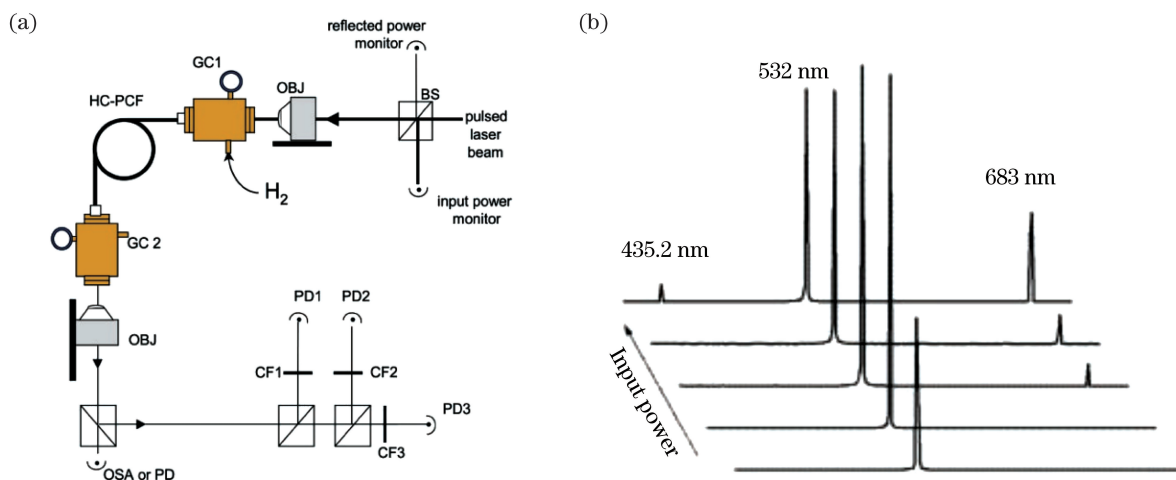


图 5 空芯光纤内氢气的振动受激拉曼散射实验^[7]。(a)系统结构;(b)输出光谱

Fig. 5 Experiment of vibrational stimulated Raman scattering of hydrogen in HCF^[7]. (a)System structure;(b)output spectra

泵浦激光经分束镜、透镜以及玻璃窗口被耦合到空芯光纤内,在沿光纤传输的过程中与氢气发生振动受激拉曼散射,在空芯光纤的输出端产生了 683 nm 的一阶斯托克斯红光和 435 nm 一阶反斯托克斯蓝光输出,输出光谱图如图 5(b)所示。当光纤长度为 32 cm 左右时,实验获得的 683 nm 最高功率转化效率(斯托克斯光功率与泵浦光功率的比值)约为 30%。该项研究证明了空芯光纤在降低气体拉曼阈值和提高拉曼转化效率方面的重要作用,开启了光纤气体拉曼激光光源的新纪元。

相比可见光波段,在 1~2 μm 的近红外波段,关于光纤氢气拉曼激光光源的研究非常多,大多研究主要集中在 1.1 μm 和 1.9 μm 波段。这是因为这些研究基本上都以 1064 nm 高峰值功率的固体激光器或者光纤激光器作为泵浦源,而 1.1 μm 和 1.9 μm 波段正好分别对应于氢气受激拉曼散射的转动谱线和振动谱线的波长。

2004 年, Benabid 等^[27] 报道了空芯光纤内 1135 nm 的氢气纯转动拉曼实验。该实验系统与图 5 基本相似,只是泵浦激光改用 1064 nm 的圆偏振光,空芯光纤改用新拉制的窄带低损带隙型空芯光纤。泵浦激光的圆偏振特性以及带隙型空芯光纤的

窄带特性有效地抑制了振动拉曼谱线的产生,因此该研究成功实现了量子效率(斯托克斯光子数与泵浦光子数的比值)高达 92% 的 1135 nm 的一阶转动斯托克斯激光输出,并且脉冲光峰值功率阈值仅为瓦级。2005 年, Bath 大学在进一步的实验中,通过更换泵浦源,提高了注入泵浦脉冲的能量,在长度为 11 m 的同一款带隙型空芯光纤内获得了 900~1200 nm 波段范围内的 8 条转动拉曼谱线,实验同时研究了瞬态稳态受激拉曼散射的过渡条件和阈值特性^[28]。Benabid 等^[29] 通过熔接空芯光纤与单模实芯光纤,构建了全光纤气体腔结构,开展了氢气的受激拉曼散射实验研究^[26],其实验系统结构如图 6 所示。其中图 6(a)为单程结构的光纤氢气拉曼激光光源,泵浦源为 1064 nm 连续光光纤激光器,空芯光纤的输入端熔接有单模光纤,输出端仍密封于气体腔中,该单程结构激光光源获得了功率转化效率约为 45% 的拉曼激光输出^[26]。另外, Couny 等^[26] 还通过在单模实芯光纤上刻光栅的方式在实验系统中引入了谐振腔的结构,进而将氢气的拉曼阈值从 2.25 W 降低至 600 mW,系统结构如图 6(b)所示。2010 年,通过使用高平均功率的泵浦源, Couny 等^[30] 将 1135 nm 拉曼激光的功率提升至 55 W。

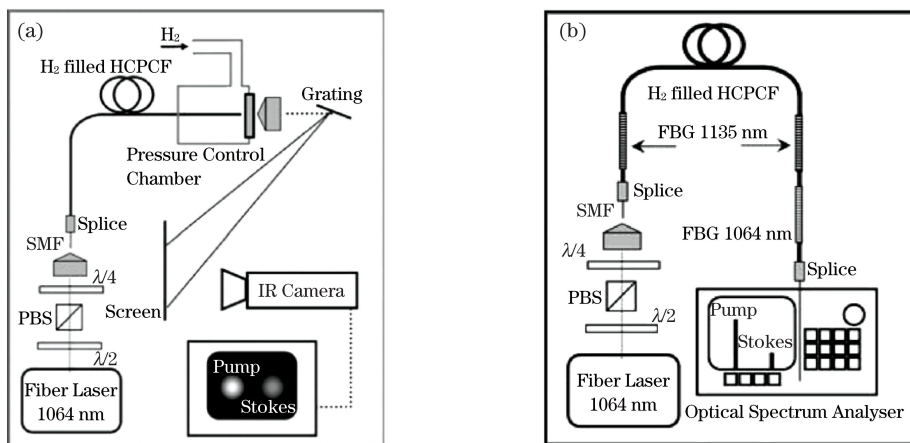


图 6 空芯光纤中氢气的转动受激拉曼散射实验结构^[26]。(a)单程结构;(b)谐振腔结构

Fig. 6 Experimental structures of rotational stimulated Raman scattering of hydrogen in HCF^[26]. (a) Single-pass structure; (b) resonant cavity structure

1.9 μm 波段的光纤氢气拉曼激光光源最早于 2014 年由国防科技大学和 Bath 大学合作报道。该研究使用一个线偏振的 1064 nm 亚纳秒脉冲激光器泵浦一段 6.5 m 长并充有高压氢气的低损耗冰激凌型反共振空芯光纤,获得了 1908 nm 的振动斯托克斯激光,最大功率转化效率为 27%,相应的量子效率为 48%,峰值功率大于 2 kW^[31]。2015 年,

Gladyshev 等^[32] 利用脉宽为 125 ns 的调 Q 固体 Nd:YAG 激光器泵浦一段充有 3.1 MPa 氢气的无节点转轮型反共振空芯光纤,实现了平均功率为 300 mW 的 1.9 μm 激光输出,峰值功率为 3 kW,功率转化效率为 33.5%。随后于 2016 年,俄罗斯科学院通过更换纤芯直径更小的反共振空芯光纤,将 1.9 μm 拉曼激光的峰值功率阈值降低至 350 W^[33]。

2017 年,国防科技大学使用高峰值功率的 1064 nm 微芯片激光器作为泵浦源,在 1.4 m 长并充有 300 kPa 氢气的冰激凌型反共振空芯光纤内实现了峰值功率为 150 kW、线宽为 2 GHz 的 1.9 μm 拉曼激光输出,最大的量子效率约为 54%^[35]。2018 年,在前述实验的基础上,国防科技大学实验研究了种子注入对 1.9 μm 氢气拉曼激光光源的影响,系统结构如图 7 所示。实验利用一块双色镜将 1064 nm 的泵浦激光和 1908 nm 的连续种子激光耦合进入空芯光纤。结果表明,种子注入在降低阈值、抑制转动谱线和提高转化效率等方面起着重要的作

用,其中在功率方面,1908 nm 的激光量子效率被提升至 73.5%^[34]。随后国防科技大学使用瓦级的含有主振荡器功率放大器(MOPA)的调 Q 固体激光器作为泵浦源,同样使用种子注入的方式,实现了平均功率为 570 mW、峰值功率为 50 kW 的 1.9 μm 拉曼激光输出,相应的量子效率为 51.1%^[36]。另外,Benoit 等^[37]报道了高功率的 1.8 μm 氢气拉曼激光光源实验,他们使用 1.03 μm 的掺镱光纤激光器的作为泵浦源,在 1 m 长并充有 2.5 MPa 氢气的 Kagome 型空芯光纤内实现了平均功率高达 9.2 W 的 1.8 μm 振动拉曼激光输出,量子效率约为 74%。

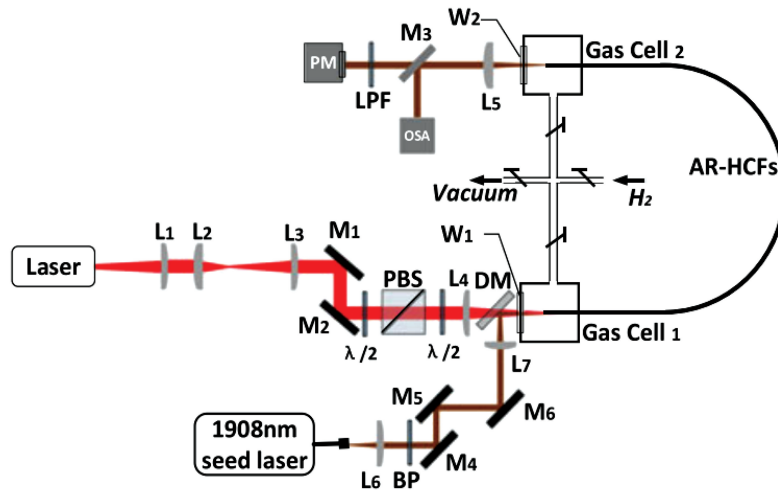


图 7 种子注入下的光纤氢气拉曼激光光源示意图^[34]

Fig. 7 Schematic of fiber hydrogen Raman laser source under seed injection^[34]

此外,使用 1.5 μm 波段的泵浦源,利用氢气的转动受激拉曼散射,可以实现 1.7 μm 波段的拉曼激光输出。2020 年,国防科技大学报道了基于空芯光纤内氢气受激拉曼散射的 1.7 μm 光纤激光,通过使用 1550 nm 脉冲激光泵浦一段 3 m 长并充有 1.2 MPa 氢气的带隙型空芯光纤,实现了最高功率为 0.5 W 的 1705 nm 的拉曼激光输出^[38]。随后国防科技大学通过改进泵浦源以及使用损耗更低的带隙型空芯光纤,报道了 1.7 μm 波段的可调谐光纤氢气拉曼激光光源,该研究通过使用可调谐的 1.5 μm 脉冲放大器作为泵浦源,在 20 m 长并充有 1.6 MPa 氢气的带隙型空芯光纤内,获得了 1687~1723 nm 的纯转动拉曼激光输出,最高输出功率约为 0.8 W,最大的功率转化效率为 60%^[39]。

在 2~5 μm 的中红外波段,受光纤和泵浦源性能的影响,关于光纤氢气拉曼激光光源的研究鲜有报道。氢气的振动拉曼频移系数为 4155 cm^{-1} ,为了实现中红外激光输出,泵浦波长一般在 1.5 μm

波段,相应的拉曼波长一般在 4 μm 波段。2017 年,Gladyshev 等^[40]使用波长为 1558 nm 的脉冲掺铒光纤放大器作为泵浦源,在 15 m 长并充有 3 MPa 氢气的无节点转轮型空芯光纤内,利用氢气的振动受激拉曼散射,首次实现了平均功率约为 30 mW 的 4.42 μm 的脉冲拉曼激光输出,相应的量子效率约为 15%。随后他们通过缩短光纤长度,即选用 3.2 m 长的空芯光纤,并提高气压至 5 MPa,实现了平均功率为 250 mW 的 4.42 μm 激光输出,相应的量子效率约为 36%^[41]。之后他们通过优化泵浦源的性能,提高泵浦功率并且使泵浦源线偏输出,实现了平均功率为 1.4 W 的 4.42 μm 激光输出,相应的量子效率约为 53%^[42-43]。

在紫外波段,氢气拉曼激光主要以频率梳的方式产生。2007 年,Couny 等^[44]报道了氢气填充空芯光纤内的频率梳实验研究。他们将峰值功率为 40 kW、脉宽为 3 ns 的 1064 nm 激光脉冲耦合进入 1 m 长并充有 2 MPa 氢气的 Kagome 空芯光纤内,

在光纤的输出端获得了 325~2300 nm 范围内的总共 45 条拉曼谱线(振动和转动)。2016 年, Mridha 等^[45]使用 266 nm 的紫外光泵浦一段长度为 10 cm 并充有高压氢气的 Kagome 型空芯光纤, 在 184~478 nm 范围内总共获得了 6 条振动拉曼谱线。

3.2 氙气拉曼激光光源

除了氢气, 氙气也是常见的拉曼介质。作为氢的同位素, 氙分子(D₂)的质量约为氢分子(H₂)的两倍, 因此其拉曼频移系数要小于氢气, 振动频移系数约为 2987 cm⁻¹, 较为常见的转动频移系数有 ~415 cm⁻¹、~297 cm⁻¹ 和 ~179 cm⁻¹ 三种。另外, 与氢气相比较, 氙气受激拉曼散射的阈值较大, 同时更容易产生多条转动拉曼谱线。

2018 年, 俄罗斯科学院报道了反共振空芯光纤中氢气和氙气混合气体的受激拉曼散射实验。他们使用一个 1558 nm 掺铒光纤放大器泵浦了一段 11 m 长并充有 0.2 MPa 氢气和 2.8 MPa 氙气混合气体的无节点转轮型反共振空芯光纤, 获得了 2.9 μm, 3.3 μm 和 3.5 μm 的拉曼激光输出, 其中 2.9 μm 为氙气的振动拉曼谱线, 3.3 μm 和 3.5 μm 分别为 2.9 μm 的一阶转动和二阶转动斯托克斯波长, 三个波长激光的总功率转化效率约为 10%^[46]。2019 年, 国防科技大学开展了空芯光纤内纯氙气受激拉曼散射实验研究, 该研究使用 1064 nm 的脉冲微芯激光器进行泵浦, 在一段长度为 2 m 并充有 400 kPa 氙气的冰激凌型反共振空芯光纤内, 实现了平均功率为 27 mW 的 1561 nm 振动拉曼激光输出, 相应的功率转化效率为 30%^[47]。2019 年, 国防科技大学使用自研的可调谐 1.5 μm 脉冲激光作为泵浦光, 在长度为 20 m 并充有 2 MPa 氙气的商用带隙空芯光纤内, 获得了 1640~1674 nm 的转动拉曼激光输出, 最高输出功率约为 0.8 W, 最大的功率转化效率为 60%^[48-49]。

3.3 甲烷/乙烷拉曼激光光源

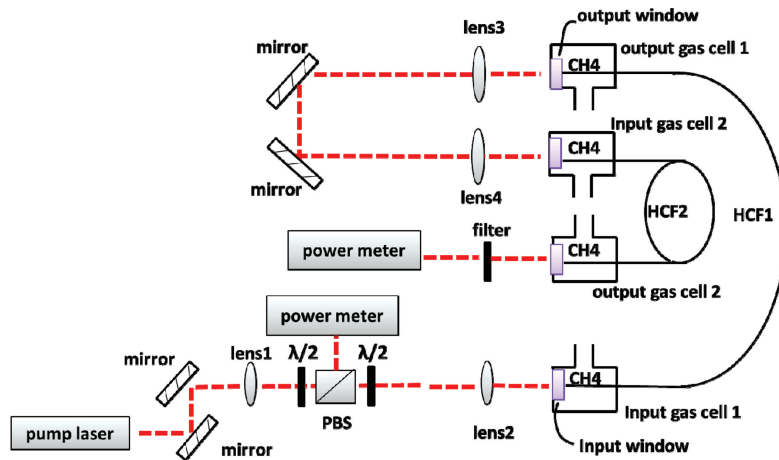
在光纤气体拉曼激光光源中, 烷烃类气体也是较为常用的拉曼介质, 由于难以发生转动拉曼散射, 因此相比于氢气, 烷烃类气体的受激拉曼散射具有光谱干净的特点。一般来说, 烷烃类气体如甲烷, 其一阶振动斯托克斯光转化效率要高于氢气的一阶振动斯托克斯光转化效率。

2016 年, 国防科技大学首次开展了空芯光纤内乙烷的受激拉曼散射实验研究^[50-51]。该研究使用 1064 nm 微芯激光器作为泵浦源, 在长度为 6 m 的充有 200 kPa 乙烷气体的冰激凌型反共振空芯光纤

内实现了 1553 nm(拉曼频移为 2954 cm⁻¹)的振动拉曼激光输出, 输出最大功率约为 25 mW(峰值功率为 400 kW), 相应的功率转化效率为 38%。实验结果同时表明, 乙烷气压的增加将会加大 1.55 μm 波段激光的传输损耗, 这限制了乙烷在光纤气体拉曼激光光源中的应用。随后国防科技大学将目光转向了甲烷, 并于 2017 年报道了空芯光纤甲烷拉曼放大器的研究, 同文献[34]报道的系统结构类似, 该研究在单程结构的基础上增加了种子注入的部分, 在一段长度为 2 m 并充有 200 kPa 甲烷的冰激凌型反共振空芯光纤内, 实现了量子效率高达 96.3%的 1544 nm(拉曼频移为 2917 cm⁻¹)的振动拉曼激光输出, 对应的功率转化效率为 66.4%^[52]。2018 年, 国防科技大学通过使用瓦级的具有 MOPA 结构的调 Q 固体激光器作为泵浦源, 同样使用种子注入的方式, 在长度为 3.2 m 并充有 100 kPa 甲烷的空芯光纤内, 实现了平均功率为 0.83 W、峰值功率约为 60 kW 的 1544 nm 拉曼激光输出, 相应的量子效率约为 65%^[53]。

除了产生 1.5 μm 波段激光, 利用甲烷的级联受激拉曼散射, 甲烷拉曼激光光源还可产生 2.8 μm 波段激光。2018 年, Cao 等^[55]使用自研的 1064 nm 波长、91 MW 高峰值功率的皮秒级 Nd:YAG 激光器作为泵浦源, 在长度为 3 m 并充有 1.8 MPa 甲烷的无节点转轮型空芯光纤内, 获得了 2812 nm 的拉曼激光, 输出平均功率为 113 mW, 1~2.8 μm 的量子效率约为 40%。国防科技大学则在实验系统上采取级联的方式, 实现了 1 μm 激光向 2.8 μm 激光的转化^[54]。如图 8 所示, 系统第一级为 1544 nm 的甲烷拉曼激光光源, 通过使用 1064 nm 的脉冲微芯激光器泵浦长度为 2 m 并充有 200 kPa 甲烷的冰激凌型反共振空芯光纤, 以实现 1544 nm 的拉曼激光输出; 系统第二级以第一级的拉曼激光光源为泵浦源, 将 1544 nm 激光耦合到长度为 2.2 m 并充有 1.1 MPa 甲烷的无节点转轮型反共振空芯光纤内, 实现了 2809 nm 的激光输出。其中 2.8 μm 激光的功率为 13.8 mW, 整个系统的量子效率为 65%(1 μm 激光转换为 2.8 μm 激光)。随后国防科技大学继续采用级联方式进行实验研究, 分别向第一、二级空芯光纤内充入氙气和甲烷, 实现了 2.8 μm 不同气体级联拉曼激光输出^[47], 并通过向实验系统第一、二级的空芯光纤内都充入氙气, 实现了 2.9 μm 的级联拉曼激光输出^[56]。

此外, 通过使用 1.5 μm 波段的脉冲激光进行泵浦, 也可以产生 2.8 μm 波段的激光输出。2019 年,

图 8 级联结构的光纤甲烷拉曼激光光源示意图^[54]Fig. 8 Schematic of cascaded fiber methane Raman laser source^[54]

国防科技大学使用自行搭建的 $1.5 \mu\text{m}$ 可调谐脉冲光纤放大器, 泵浦长度为 15 m 并充有 1.6 MPa 甲烷的无节点转轮型反共振空芯光纤, 实现了 $2796 \sim 2863 \text{ nm}$ 的可调谐拉曼激光输出, 最高输出功率约为 34 mW ^[57]。

3.4 其他气体拉曼激光光源

除了上述气体, 还有少量使用其他气体构建光纤气体拉曼激光光源的报道。2019 年, Krupa 等^[58] 报道了空芯光纤内二氧化碳受激拉曼散射的实验研究, 他们使用一个 1064 nm 的 Nd: YAG 微芯激光器作为泵浦源, 在长度为 3 m 并充有 600 kPa 二氧化碳的带隙型空芯光纤内实现了四条振动拉曼激光输出, 其中波长为 1248 nm 的一阶斯托克斯 (拉曼频移为 1389 cm^{-1}) 激光的功率约为 5 mW , 相应的功率转化效率约为 37% 。2019 年, Edelstein 等^[59] 报道了带隙型空芯光纤内 SF_6 和 CF_4 的受激拉曼散射的实验研究, 其中 SF_6 和 CF_4 的拉曼频移系数分别为 775 cm^{-1} 和 908 cm^{-1} 。他们使用波长为 1030 nm 的调 Q 掺镱光纤激光器作为泵浦源, 在长度为 15 m 并充有 1.2 MPa SF_6 的带隙型空芯光纤内获得了 1119 nm 的振动拉曼输出, 相应的功率转化效率为 55.7% 。当气体更换为 1.2 MPa 的 CF_4 时, 实验获得了功率转化效率为 45.4% 的 1136 nm 的拉曼激光输出。

4 光纤气体拉曼激光光源的发展情况总结

光纤气体拉曼激光器自 2002 年首次被报道以来, 已经发展了将近二十年, 随着空芯光纤制备工艺

的改进和各种类型空芯光纤的出现, 光纤气体拉曼激光光源的输出波长得到极大丰富和拓展, 通过使用氢气、氙气和甲烷等气体, 实现了紫外至中红外波段的拉曼激光输出。表 2 总结了国内外具有代表性的光纤气体拉曼激光光源的发展情况。

从表 2 中可以看到, 当前的研究绝大部分集中在一阶斯托克斯光的产生方面。主要原因有以下两个方面。一方面, 一阶斯托克斯光的拉曼增益系数最大, 拉曼阈值相对较低, 一阶斯托克斯光最容易产生。另一方面, 在空芯光纤中产生高效的高阶斯托克斯光存在一定的难度, 必须满足一些特殊的条件。1) 泵浦光、一阶斯托克斯光和高阶斯托克斯光都必须空芯光纤的传输带内, 由于气体的拉曼频移一般都很大, 因此空芯光纤的传输带带宽非常大。以氢气为例, $1 \mu\text{m}$ 激光泵浦产生的一阶振动斯托克斯光在 $1.9 \mu\text{m}$ 波段, 二阶振动斯托克斯光则频移到了 $9 \mu\text{m}$ 波段, 泵浦波长和二阶斯托克斯光的波长相距甚远。因此, 为了实现二阶斯托克斯光输出, 空芯光纤必须同时支持 $1, 2, 9 \mu\text{m}$ 波段的激光传输, 设计和控制上都存在很大困难。2) 空芯光纤要实现长波段的有效传输, 纤芯直径一般都会比较大, 而拉曼阈值与纤芯面积成正比, 这就要求产生高阶斯托克斯光的泵浦光功率比产生一阶斯托克斯光的泵浦光功率高得多, 对泵浦源提出了更高的要求。此外, 在没有反馈的情况下, 一般很难实现特定高阶斯托克斯光的高效转换, 必须要有谐振腔, 而目前基于空芯光纤的气体拉曼激光器基本都采用图 2 所示的空间耦合系统结构, 很难实现谐振腔结构。

表 2 光纤气体拉曼激光光源的发展情况

Table 2 Progress of fiber gas Raman laser sources

Reference	Pump wavelength	Raman wavelength	Gas	Raman power (fiber length)	Conversion efficiency
[7]	532 nm	683 nm	H ₂		30% (power conversion efficiency)
[26]	1064 nm	1135 nm	H ₂		50% (quantum efficiency)
[27]	1064 nm	1135 nm	H ₂		92% (quantum efficiency)
[30]	1064 nm	1135 nm	H ₂	55 W (30 m)	>70% (power conversion efficiency)
[31]	1064 nm	1907 nm	H ₂	10 mW (6.5 m)	48% (quantum efficiency)
[32]	1064 nm	1907 nm	H ₂	330 mW (2.25 m)	60% (quantum efficiency)
[33]	1064 nm	1907 nm	H ₂		40% (quantum efficiency)
[34]	1064 nm	1908 nm	H ₂	74.2 mW (1.4 m)	73.5% (quantum efficiency)
[35]	1064 nm	1907 nm	H ₂	55 mW (1.4 m)	54% (quantum efficiency)
[36]	1064 nm	1908 nm	H ₂	570 mW (2 m)	51.1% (quantum efficiency)
[37]	1 μm	1.8 μm	H ₂	9.3 W (1 m)	41% (power conversion efficiency)
[38]	1550 nm	1705 nm	H ₂	0.5 W (3 m)	32% (power conversion efficiency)
[39]	1535–1565 nm	1687–1723 nm	H ₂	0.8 W (20 m)	60% (power conversion efficiency)
[40]	1558 nm	4.4 μm	H ₂	30 mW (15 m)	15% (quantum efficiency)
[41]	1558 nm	4.42 μm	H ₂	250 mW (3.5 m)	36% (quantum efficiency)
[42–43]	1558 nm	4.42 μm	H ₂	1.4 W (3.2 m)	53% (quantum efficiency)
[46]	1558 nm	2.9 μm	H ₂ /D ₂	0.25 kW (11 m)	10% (quantum efficiency)
[47]	1064 nm	1561 nm	D ₂	27 mW (2.2 m)	30% (power conversion efficiency)
[47]	1561 nm	2865 nm	CH ₄	8.5 mW (2 m)	42% (power conversion efficiency)
[48]	1535–1565 nm	1640–1674 nm	D ₂	0.8 W (20 m)	60% (power conversion efficiency)
[50]	1064 nm	1553 nm	C ₂ H ₆	24.6 mW (6 m)	38% (power conversion efficiency)
[52]	1064 nm	1544 nm	CH ₄	43 mW (2 m)	96.3% (quantum efficiency)
[53]	1064 nm	1544 nm	CH ₄	0.83 W (3.2 m)	45% (power conversion efficiency)
[54]	1064 nm	2809 nm	CH ₄	13.8 mW	65% (quantum efficiency)
[55]	1064 nm	2812 nm	CH ₄	113 mW	40% (quantum efficiency)
[57]	1540–1560 nm	2796–2863 nm	CH ₄	34 mW (14.2 m)	
[58]	1064 nm	1248 nm	CO ₂	5 mW (3 m)	37% (power conversion efficiency)
[59]	1030 nm	1119 nm	SF ₆		55.7% (power conversion efficiency)
[59]	1030 nm	1136 nm	CF ₄		45.4% (power conversion efficiency)

5 结束语

虽然近年来光纤气体拉曼激光器得到了极大关注,但是整体研究还处于初始的发展阶段,目前存在的主要问题包括:1)空间耦合结构的不稳定性严重制约激光器的应用;2)空芯光纤特别是适合中红外波段应用的反共振空芯光纤的拉制工艺还没有达到商业化水平;3)空芯光纤相关的器件还未发展起来;

4)实芯光纤与空芯光纤的低损耗耦合亟待解决。针对这些问题,未来光纤气体拉曼激光光源的发展主要有以下几个方向。

一是光源系统的全光纤化。图 2 所示的空间耦合实验系统比较复杂,而且耦合效率对周围环境比较敏感,这在很大程度上制约了光纤气体拉曼激光光源的实际应用。在未来发展中,光纤气体拉曼激光光源的实用化是一个必然的趋势,因此泵浦激光

在空芯光纤内的低损耗、高稳定性的耦合是一个需要解决的关键问题。虽然目前已通过实芯光纤和带隙型光纤熔接的方式实现了高稳定性的激光耦合^[37-38],但是对于反共振空芯光纤而言,实用型的高稳定性低损耗耦合器件的研究仍然处于起步阶段^[60-61],相关技术仍有待研究和发。实芯光纤和空芯光纤的高稳定性低损耗耦合密封器件的研制将是光纤气体拉曼激光光源走向产品化生产的关键。此外,全光纤气体腔的制备和充放气装置的小型化设计等也是光纤气体拉曼激光光源实用化发展中需要逐步解决的问题。

二是输出波长往中红外甚至远红外方向拓展。气体拉曼激光器是实现中红外甚至远红外激光输出的有效手段。相比于传统的光纤激光器,光纤气体拉曼激光器得益于空芯光纤的优势,不同增益气体有利于实现 3~5 μm 波段的中红外光纤激光输出,而且可以实现大范围的输出激光波长调谐。因此,在进一步深入研究后,成熟的光纤气体拉曼激光光源将填补目前光纤激光器在中红外波段领域特别是 4 μm 以上的空白,成为中红外激光领域的重要光源。通过合理设计空芯光纤、选用合适的玻璃材料(比如氯化物或氟化物玻璃)来制备空芯光纤并采用合适的气体增益介质,有望实现有效的远红外波段的光纤气体拉曼激光输出。

三是连续波光纤气体拉曼激光的产生。由于气体受激拉曼散射阈值非常高,在自由空间中往往需要 MW 级峰值功率。空芯光纤大大降低了气体拉曼阈值,但是由于使用的空芯光纤的纤芯直径不同(通常波长越长芯径越大),泵浦阈值差别很大。当使用纤芯直径较小的带隙型空芯光纤产生近红外波段拉曼激光时,气体拉曼阈值可能小于 1 W,比较容易实现连续波激光输出^[26]。但是,当使用纤芯直径较大的反共振空芯光纤产生中红外波段拉曼激光时,气体拉曼阈值则需要数 kW 甚至超过 10 kW^[42-43,46,54-55],难以实现连续波输出。随着反共振空芯光纤制备工艺的改进,空芯光纤的传输损耗得到进一步降低。在满足传输带需求的同时尽可能减小纤芯直径,在实现全光纤结构的基础上有望获得连续波中红外光纤气体拉曼激光的输出。

四是输出功率的提升。目前,光纤气体拉曼激光的研究集中在波长拓展方面,大多数研究报道的功率水平在瓦级以下,功率水平最高的也只有 50 W 左右^[30]。在空间光路耦合结构下,耦合点处的巨大能量密度导致空芯光纤端面极易损伤,这是影响激

光源功率提升的主要因素。未来通过优化系统、解决端面损坏问题及使用更高平均功率的泵浦源,将能够实现光纤气体拉曼激光光源功率的提升。随着全光纤气体腔关键技术的突破,有望实现高功率的全光纤气体拉曼激光器,此类光源也将往应用的方向发展。

参 考 文 献

- [1] Minck R W, Terhune R W, Rado W G. Laser-stimulated Raman effect and resonant four-photon interactions in gases H_2 , D_2 , and CH_4 [J]. Applied Physics Letters, 1963, 3(10): 181-184.
- [2] Brink D J, Proch D. Efficient tunable ultraviolet source based on stimulated Raman scattering of an excimer-pumped dye laser [J]. Optics Letters, 1982, 7(10): 494-496.
- [3] Loree T R, Cantrell C D, Barker D L. Stimulated Raman emission at 9.2 μm from hydrogen gas [J]. Optics Communications, 1976, 17(2): 160-162.
- [4] Rabinowitz P, Kaldor A, Brickman R, et al. Waveguide H_2 Raman laser [J]. Applied Optics, 1976, 15(9): 2005-2006.
- [5] Brasseur J K, Repasky K S, Carlsten J L. Continuous-wave Raman laser in H_2 [J]. Optics Letters, 1998, 23(5): 367-369.
- [6] Cregan R F, Mangan B J, Knight J C, et al. Single-mode photonic band gap guidance of light in air [J]. Science, 1999, 285(5433): 1537-1539.
- [7] Benabid F, Knight J C, Antonopoulos G, et al. Stimulated Raman scattering in hydrogen-filled hollow-core photonic crystal fiber [J]. Science, 2002, 298(5592): 399-402.
- [8] Ding W, Wang Y Y, Gao S F, et al. Recent progress in low-loss hollow-core anti-resonant fibers and their applications [J]. IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics, 2020, 26(4): 1-12.
- [9] Gao S F, Wang Y Y, Wang P. Research progress on hollow-core anti-resonant fiber and gas Raman laser technology [J]. Chinese Journal of Lasers, 2019, 46(5): 0508014.
高寿飞, 汪滢莹, 王璞. 反谐振空芯光纤及气体拉曼激光技术的研究进展 [J]. 中国激光, 2019, 46(5): 0508014.
- [10] Smith C M, Venkataraman N, Gallagher M T, et al. Low-loss hollow-core silica/air photonic bandgap fibre [J]. Nature, 2003, 424(6949): 657-659.
- [11] Mangan B J, Farr L, Langford A, et al. Low loss (1.7 dB/km) hollow core photonic bandgap fiber [C]// Optical Fiber Communication Conference 2004, February 22, 2004, Los Angeles, California, United States. Washington, D.C.: OSA, 2004: PD24.

- [12] Roberts P, Couny F, Sabert H, et al. Ultimate low loss of hollow-core photonic crystal fibres[J]. *Optics Express*, 2005, 13(1): 236-244.
- [13] Amezcua-Correa R, Broderick N G, Petrovich M N, et al. Design of 7 and 19 cells core air-guiding photonic crystal fibers for low-loss, wide bandwidth and dispersion controlled operation [J]. *Optics Express*, 2007, 15(26): 17577-17586.
- [14] Petrovich M N, Baddela N K, Wheeler N V, et al. Development of low loss, wide bandwidth hollow core photonic bandgap fibers [C] // *Optical Fiber Communication Conference 2013*, March 17-21, 2013, Anaheim, California, United States. Washington, D.C.: OSA, 2013: OTh1J.3.
- [15] Wheeler N V, Heidt A M, Baddela N K, et al. Low-loss and low-bend-sensitivity mid-infrared guidance in a hollow-core-photonic-bandgap fiber[J]. *Optics Letters*, 2014, 39(2): 295-298.
- [16] Zhang X, Gao S F, Wang Y Y, et al. 7-cell hollow-core photonic bandgap fiber with broad spectral bandwidth and low loss[J]. *Optics Express*, 2019, 27(8): 11608.
- [17] Litchinitser N M, Abeeluck A K, Headley C, et al. Antiresonant reflecting photonic crystal optical waveguides [J]. *Optics Letters*, 2002, 27 (18): 1592-1594.
- [18] Wang Y Y, Wheeler N V, Couny F, et al. Low loss broadband transmission in hypocycloid-core Kagome hollow-core photonic crystal fiber [J]. *Optics Letters*, 2011, 36(5): 669-671.
- [19] Pryamikov A D, Biriukov A S, Kosolapov A F, et al. Demonstration of a waveguide regime for a silica hollow-core microstructured optical fiber with a negative curvature of the core boundary in the spectral region $>3.5 \mu\text{m}$ [J]. *Optics Express*, 2011, 19(2): 1441-1448.
- [20] Yu F, Wadsworth W J, Knight J C. Low loss silica hollow core fibers for 3-4 μm spectral region [J]. *Optics Express*, 2012, 20(10): 11153-11158.
- [21] Gao S F, Wang Y Y, Liu X L, et al. Bending loss characterization in nodeless hollow-core anti-resonant fiber[J]. *Optics Express*, 2016, 24 (13): 14801-14811.
- [22] Gao S F, Wang Y Y, Ding W, et al. Hollow-core conjoined-tube negative-curvature fibre with ultralow loss [J]. *Nature Communications*, 2018, 9 (1): 2828.
- [23] Bradley T D, Jasion G T, Hayes J R, et al. Antiresonant hollow core fibre with 0.65 dB/km attenuation across the C and L telecommunication bands [C] // *45th European Conference on Optical Communication*, September 22-26, 2019, Dublin, Ireland. New York: IEEE, 2019.
- [24] Russell P, Hölzer P, Chang W, et al. Hollow-core photonic crystal fibres for gas-based nonlinear optics [J]. *Nature Photonics*, 2014, 8(4): 278-286.
- [25] Gérôme F, Jamier R, Auguste J L, et al. Simplified hollow-core photonic crystal fiber [J]. *Optics Letters*, 2010, 35(8): 1157-1159.
- [26] Couny F, Benabid F, Light P S. Subwatt threshold cw Raman fiber-gas laser based on H_2 -filled hollow-core photonic crystal fiber [J]. *Physical Review Letters*, 2007, 99(14): 143903.
- [27] Benabid F, Bouwmans G, Knight J C, et al. Ultrahigh efficiency laser wavelength conversion in a gas-filled hollow core photonic crystal fiber by pure stimulated rotational Raman scattering in molecular hydrogen[J]. *Physical Review Letters*, 2004, 93 (12): 123903.
- [28] Benabid F, Antonopoulos G, Knight J C, et al. Stokes amplification regimes in quasi-cw pumped hydrogen-filled hollow-core photonic crystal fiber [J]. *Physical Review Letters*, 2005, 95 (21): 213903.
- [29] Benabid F, Couny F, Knight J C, et al. Compact, stable and efficient all-fibre gas cells using hollow-core photonic crystal fibres[J]. *Nature*, 2005, 434 (7032): 488-491.
- [30] Couny F, Mangan B J, Sokolov A V, et al. High power 55 watts CW Raman fiber-gas-laser [C] // *Conference on Lasers and Electro-Optics 2010*, May 16-21, 2010, San Jose, California, United States. Washington, D.C.: OSA, 2010: CTuM3.
- [31] Wang Z F, Yu F, Wadsworth W J, et al. Efficient 1.9 μm emission in H_2 -filled hollow core fiber by pure stimulated vibrational Raman scattering [J]. *Laser Physics Letters*, 2014, 11(10): 105807.
- [32] Gladyshev A V, Kolyadin A N, Kosolapov A F, et al. Efficient 1.9 μm Raman generation in a hydrogen-filled hollow-core fibre [J]. *Quantum Electronics*, 2015, 45(9): 807-812.
- [33] Gladyshev A V, Kolyadin A N, Kosolapov A F, et al. Low-threshold 1.9 μm Raman generation in microstructured hydrogen-filled hollow-core revolver fibre with nested capillaries [J]. *Laser Physics*, 2017, 27(2): 025101.
- [34] Li Z X, Huang W, Cui Y L, et al. High-efficiency, high peak-power, narrow linewidth 1.9 μm fiber gas Raman amplifier [J]. *Journal of Lightwave Technology*, 2018, 36(17): 3700-3706.
- [35] Wang Z F, Gu B, Chen Y B, et al. Demonstration of a 150-kW-peak-power, 2-GHz-line-width, 1.9- μm

- fiber gas Raman source[J]. *Applied Optics*, 2017, 56(27): 7657-7661.
- [36] Li Z X, Huang W, Cui Y L, et al. Efficient high power, narrow linewidth 1.9 μm fiber hydrogen Raman amplifier[J]. *Applied Optics*, 2018, 57(14): 3902-3906.
- [37] Benoit A, Beaudou B, Debord B, et al. High power Raman-converter based on H_2 -filled inhibited coupling HC-PCF[J]. *Proceedings of SPIE*, 2017, 1008: 100880H.
- [38] Huang W, Cui Y L, Li Z X, et al. Research on 1.7 μm fiber laser source based on stimulated Raman scattering of hydrogen in hollow-core fiber[J]. *Acta Optica Sinica*, 2020, 40(5): 0514001.
黄威, 崔宇龙, 李智贤, 等. 基于空芯光纤中氢气受激拉曼散射的 1.7 μm 光纤激光光源研究[J]. *光学学报*, 2020, 40(5): 0514001.
- [39] Huang W, Li Z X, Cui Y L, et al. Efficient, watt-level, tunable 1.7 μm fiber Raman laser in H_2 -filled hollow-core fibers[J]. *Optics Letters*, 2020, 45(2): 475-478.
- [40] Gladyshev A V, Kosolapov A F, Khudyakov M M, et al. 4.4 μm Raman laser based on hollow-core silica fibre[J]. *Quantum Electronics*, 2017, 47(5): 491-494.
- [41] Gladyshev A V, Kosolapov A F, Astapovich M S, et al. Revolver hollow-core fibers and Raman fiber lasers[C]//*Optical Fiber Communication Conference 2018*, March 11-15, 2018, San Diego, California, United States. Washington, D. C.: OSA, 2018: M2J.7.
- [42] Astapovich M S, Gladyshev A V, Khudyakov M M, et al. 4.4 μm Raman generation with an average power above 1 W in silica revolver fibre [J]. *Quantum Electronics*, 2018, 48(12): 1084-1088.
- [43] Astapovich M S, Gladyshev A V, Khudyakov M M, et al. Watt-level nanosecond 4.42- μm Raman laser based on silica fiber[J]. *IEEE Photonics Technology Letters*, 2019, 31(1): 78-81.
- [44] Couny F, Benabid F, Roberts P J, et al. Generation and photonic guidance of multi-octave optical-frequency combs [J]. *Science*, 2007, 318(5853): 1118-1121.
- [45] Mridha M K, Novoa D, Bauerschmidt S T, et al. Generation of a vacuum ultraviolet to visible Raman frequency comb in H_2 -filled kagomé photonic crystal fiber[J]. *Optics Letters*, 2016, 41(12): 2811-2814.
- [46] Gladyshev A V, Bufetov I A, Dianov E M, et al. 2.9, 3.3, and 3.5 μm Raman lasers based on revolver hollow-core silica fiber filled by H_2/D_2 gas mixture [J]. *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics*, 2018, 24(3): 1-8.
- [47] Huang W, Cui Y L, Li Z X, et al. 1.56 μm and 2.86 μm Raman lasers based on gas-filled anti-resonance hollow-core fiber [J]. *Chinese Optics Letters*, 2019, 17(7): 071406.
- [48] Cui Y L, Huang W, Li Z X, et al. High-efficiency laser wavelength conversion in deuterium-filled hollow-core photonic crystal fiber by rotational stimulated Raman scattering [J]. *Optics Express*, 2019, 27(21): 30396-30404.
- [49] Cui Y L, Huang W, Zhou Z Y, et al. Single-pass high-efficiency rotational Raman laser source based on deuterium-filled hollow-core photonic crystal fiber [J]. *Acta Optica Sinica*, 2020, 40(2): 0214001.
崔宇龙, 黄威, 周智越, 等. 基于空芯光子晶体光纤的单程高效氘气转动拉曼激光光源[J]. *光学学报*, 2020, 40(2): 0214001.
- [50] Chen Y B, Wang Z F, Gu B, et al. Achieving a 1.5 μm fiber gas Raman laser source with about 400 kW of peak power and a 6.3 GHz linewidth[J]. *Optics Letters*, 2016, 41(21): 5118-5121.
- [51] Chen Y B, Gu B, Wang Z F, et al. 1.5 μm fiber gas Raman laser source[J]. *Acta Optica Sinica*, 2016, 36(5): 0506002.
陈育斌, 顾博, 王泽锋, 等. 1.5 μm 光纤气体拉曼激光光源[J]. *光学学报*, 2016, 36(5): 0506002.
- [52] Chen Y B, Wang Z F, Li Z X, et al. Ultra-efficient Raman amplifier in methane-filled hollow-core fiber operating at 1.5 μm [J]. *Optics Express*, 2017, 25(17): 20944-20949.
- [53] Li Z X, Huang W, Cui Y L, et al. 0.83 W, single-pass, 1.54 μm gas Raman source generated in a CH_4 -filled hollow-core fiber operating at atmospheric pressure[J]. *Optics Express*, 2018, 26(10): 12522-12529.
- [54] Li Z X, Huang W, Cui Y L, et al. Efficient mid-infrared cascade Raman source in methane-filled hollow-core fibers operating at 2.8 μm [J]. *Optics Letters*, 2018, 43(19): 4671-4674.
- [55] Cao L, Gao S F, Peng Z G, et al. High peak power 2.8 μm Raman laser in a methane-filled negative-curvature fiber [J]. *Optics Express*, 2018, 26(5): 5609-5615.
- [56] Huang W, Li Z X, Cui Y L, et al. Experimental research on stimulated Raman scattering of deuterium gas in anti-resonance hollow-core fibers [J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2020, 47(1): 0101001.
黄威, 李智贤, 崔宇龙, 等. 反共振空芯光纤中氘气受激拉曼散射实验研究[J]. *中国激光*, 2020, 47(1): 0101001.

- [57] Huang W, Cui Y L, Li Z X, et al. Diode-pumped single-pass tunable mid-infrared gas Raman source by methane-filled hollow-core fiber [J]. *Laser Physics Letters*, 2019, 16(8): 085107.
- [58] Krupa K, Baudin K, Parriaux A, et al. Intense stimulated Raman scattering in CO₂-filled hollow-core fibers[J]. *Optics Letters*, 2019, 44(21): 5318-5321.
- [59] Edelstein S, Ishaaya A A. High-efficiency Raman conversion in SF₆- and CF₄-filled hollow-core photonic bandgap fibers [J]. *Optics Letters*, 2019, 44(23): 5856-5859.
- [60] Huang W, Cui Y L, Li X Q, et al. Low-loss coupling from single-mode solid-core fibers to anti-resonant hollow-core fibers by fiber tapering technique [J]. *Optics Express*, 2019, 27 (26): 37111-37121.
- [61] Cui Y L, Zhou Z Y, Huang W, et al. Quasi-all-fiber structure CW mid-infrared laser emission from gas-filled hollow-core silica fibers [J]. *Optics & Laser Technology*, 2020, 121: 105794.

Progress and Prospects of Fiber Gas Laser Sources (I) :Based on Stimulated Raman Scattering

Wang Zefeng^{1,2,3*}, Huang Wei^{1,2}, Li Zhixian^{1,2}, Zhou Zhiyue^{1,2}, Cui Yulong^{1,2}, Li Hao^{1,3}

¹*College of Advanced Interdisciplinary Studies, National University of Defense Technology, Changsha, Hunan 410073, China;*

²*State Key Laboratory of Pulsed Power Laser Technology, Changsha, Hunan 410073, China;*

³*Hunan Provincial Key Laboratory of High Energy Laser Technology, Changsha, Hunan 410073, China*

Abstract

Significance Since gas-stimulated Raman scattering (SRS) was first reported in 1963, it has been recognized as an effective method for extending laser wavelength range from the ultraviolet to infrared bands. However, the effective interaction length between laser and gas is limited, so the threshold for SRS in the traditional gas cavity is very high. Although some methods have been developed in which hollow-fiber capillaries and high-finesse cavities are adopted, the effective interaction length remains limited. This situation has not been improved until 1999 by the production of the first hollow-core fiber (HCF), which provides an ideal environment for the interaction of light and gases. The high-intensity laser is confined to the core area and continues to interact with the gas over a very long transmission distance, thus the effective interaction length is greatly increased. Because the transmission band of the HCF can be designed, it is easy to suppress those unwanted Raman lines and increase the power-conversion efficiency of the first-order Stokes wave, thus the production of efficient gas Raman lasers becomes possible. In 2002, Benabid et al. at the University of Bath conducted the first SRS experiment in a hydrogen-filled HCF, and a new era of fiber gas Raman lasers (FGRLs) is launched.

In the main text of this paper, Fig. 2 shows the typical experimental setup of the FGRL, which includes a pump source, a light-coupling system, two gas cells, and an HCF. The pump laser is coupled with the HCF via lenses and mirrors. Generally both ends of the HCF are sealed in the gas cell, through which the gas medium is pumped into the HCF. The input/output glass window mounted in the gas cell enables laser entry/exit from the HCF. SRS of the gas medium is produced by pump laser transmission along the HCF. When the pump power exceeds the given threshold, the Stokes laser power rapidly increases and can be detected at the output end of the HCF.

The HCF is a key component of the FGRLs, providing an ideal environment for gas SRS. The HCF performance parameters have a decisive influence on the laser output characteristics. For example, the transmission band range of the HCF affects the output laser wavelength, the transmission loss affects the Raman conversion efficiency, the core diameter affects the Raman threshold, the damage threshold affects the upper limit of Raman power, and the bending resistance affects the volume of the laser source system. Therefore, the recent rapid development of the HCF has greatly advanced the development of FGRLs. In general, the inside of the HCF contains air, and laser transmission in the HCF no longer meets the principle of total internal reflection. Two main mechanisms are involved: photonic band gap effect and anti-resonance reflection. Thus, HCFs can be roughly divided into two categories: photonic band gap hollow-core fibers (PBG-HCFs) and anti-resonance reflection hollow-core fibers (AR-HCFs). PBG-HCFs feature a relatively small core region and narrow transmission band, suitable for efficient rotational SRS generation. AR-HCFs

feature multiple transmission bands, suitable for gas SRS with a large Raman shift and are mainly used in the mid-infrared region. The microstructures of AR-HCFs include the Kagome type, ice-cream type, nodeless revolver type, conjoined-tube type, and nested type.

Progress Since its introduction in 2002, the FGRL has been vigorously developed. Thus far, hydrogen, deuterium, methane and other gases have been used as Raman media to achieve laser output at various bands from ultraviolet to mid-infrared. The pure rotational SRS of hydrogen in HCF with $1.1\ \mu\text{m}$ output was reported in 2004. In 2007, researchers reported the development of a continuous-wave-pumped FGRL based on a hydrogen-filled HCF. In 2014, the $1.9\ \mu\text{m}$ FGRL based on hydrogen-filled HCFs was reported. In 2016 and 2017, $1.5\ \mu\text{m}$ FGRLs based on ethane-filled and methane-filled HCFs were reported, respectively. The $4.4\ \mu\text{m}$ FGRL based on hydrogen-filled HCFs was reported in 2017. In 2018, the SRS of deuterium in HCFs was reported. In the same year, the $2.8\ \mu\text{m}$ FGRL in a methane-filled HCF was achieved, and the cascaded system was proposed. In 2019, the SRS of carbon dioxide in HCFs was reported, and the SRS of SF_6 and SF_4 in HCFs was reported. In 2020, the $1.7\ \mu\text{m}$ FGRL based on a hydrogen-filled HCF was developed. The ultraviolet laser is typically generated by Raman frequency combs. Table 2 in the main text summarizes the development of representative FBGLs worldwide.

Conclusion and Prospects Although FGRLs have rapidly developed in response to the fast development of HCFs in recent years, research remains at the very initial developmental stage. Currently, the main problems are: the limitations imposed by the instability of the spatial structure on the practicality of FGRLs; the technique used to manufacture HCFs, especially AR-HCFs, which has not reached a commercial level; the lack of development of HCF-related devices; and the urgent need to resolve the low-loss coupling of the solid-core fiber and HCF. To resolve these problems, the development of FGRLs has four main future directions: 1) development of an all-fiber system for the practical use of FGRLs; 2) extension of the output laser wavelength to the mid-infrared or even far-infrared band to enable mature FGRLs to fill the current gap of fiber lasers in the mid-infrared band, especially that above $4\ \mu\text{m}$ will become an important mid-infrared laser source; 3) achievement of continuous-wave Raman laser emission, especially in the mid-infrared range; and 4) achievement of high-power laser output. With the key technology breakthrough of the all-fiber gas cavity, the realization of high-power all-fiber gas Raman lasers should greatly promote the development of these light sources toward their practical applications.

Key words laser optics; fiber lasers; Raman scattering; Raman lasers; gas lasers; hollow-core fibers

OCIS codes 140.3510; 190.5650; 140.3550; 140.4130; 060.5295