

基于特种玻璃光纤的中红外拉曼激光器研究进展

贾志旭, 郭晓慧, 焦亚东, 秦伟平, 秦冠仕*

吉林大学电子科学与工程学院集成光电子学国家重点实验室, 吉林 长春 130012

摘要 高功率中红外光纤激光器在基础科学研究、大气通信、环境监测和国防安全等领域有着重要应用。拉曼光纤激光技术是实现中红外激光的一种重要手段,通过级联拉曼运转可在光纤透过窗口内输出任意波长激光。目前,以硝酸盐、氟化物或硫系玻璃光纤作为拉曼增益介质,研究者分别研制出工作波长为 $3.77\ \mu\text{m}$ 的二级级联拉曼激光器和波长调谐范围覆盖 $2\sim 4.3\ \mu\text{m}$ 的中红外拉曼孤子光纤激光光源。最近,本课题组制备出一种具有高稳定性、高抗激光损伤阈值、大拉曼频移和高拉曼增益系数的氟硝酸盐玻璃光纤,并以其作为拉曼增益介质,先后实现了波长调谐范围覆盖 $1.96\sim 2.82\ \mu\text{m}$ 的中红外拉曼孤子激光以及 $\sim 3\ \mu\text{m}$ 处的“拉曼孤子雨”,初步验证了该氟硝酸盐玻璃光纤在中红外拉曼光纤激光器方面的应用潜力。主要对国内外中红外拉曼光纤激光光源的研究进展进行了总结,介绍了硝酸盐、氟化物、硫系以及氟硝酸盐玻璃光纤材料的特点及相应的拉曼光纤激光器,并对发展趋势进行了展望。

关键词 激光器; 拉曼激光; 红外和远红外激光; 光纤激光; 光纤材料

中图分类号 TN248

文献标志码 A

doi: 10.3788/CJL202249.0101004

1 引言

高功率中红外波段光纤激光器在基础科学研究、生物医疗、分子光谱学、环境污染监测、遥感以及国防安全等领域有着重要的应用^[1-11]。拉曼光纤激光器和稀土离子掺杂光纤激光器是实现中红外光纤激光输出的两种重要手段。目前,利用稀土离子掺杂氟化物玻璃光纤作为增益介质,研究者已实现 $3\sim 4\ \mu\text{m}$ 波段的激光输出^[12-17]。但是,受稀土离子发射光谱带宽窄、中红外波段发光效率低、量子亏损大、基质材料声子能量较高等因素的限制,稀土离子掺杂光纤激光器很难实现任意波长的激光输出,且获得的激光输出功率随波长的增加而明显降低。在拉曼光纤激光器中,光纤中的受激拉曼散射效应提供增益,从而实现特定波长激光输出,具有高功率、高效率、高光束质量和结构紧凑等特点。受激拉曼散射是光纤中一种重要的非线性光学过程^[18]。当入射光子在介质(如光纤)中传输时,它会与介质发生作用,并被散射成波长更长的斯托克斯光子,在此

过程中损失的能量传递给介质,入射光子和斯托克斯光子之间的频率差被称为拉曼频移。产生的斯托克斯光可以作为泵浦光,产生波长更长的下一级斯托克斯光,这意味着拉曼光纤激光可实现级联运转。也就是说,只要有合适波长的泵浦光和低损耗、高激光损伤阈值的红外玻璃光纤,原则上可通过拉曼频移和级联运转在红外玻璃光纤透过窗口内产生任意波长的激光,这是稀土离子掺杂的光纤激光器难以实现的。利用石英光纤作为拉曼增益介质, $\sim 1\ \mu\text{m}$ 波段拉曼光纤激光器的输出功率已超过 $1000\ \text{W}$ ^[19-20]; 利用级联拉曼激光技术,工作波长调谐范围覆盖 $1\sim 2\ \mu\text{m}$ 的拉曼激光器也已有报道^[21-22]。但是,基于传统石英光纤的拉曼光纤激光器工作波长被限制在 $< 2.5\ \mu\text{m}$ 。这主要是由于石英玻璃光纤在中红外波段的损耗大,其不适用于研制中红外拉曼光纤激光器。目前,在中红外波段拉曼光纤激光器研究方面,国内外多个研究团队已开展了一系列的研究工作,采用的增益介质为在中红外波段具有较低损耗的硝酸盐、氟化物或硫系玻璃光纤。其中,硫系玻

收稿日期: 2021-09-27; 修回日期: 2021-10-13; 录用日期: 2021-11-01

基金项目: 国家自然科学基金(62090063, 62075082, U20A20210, 61827821)

通信作者: *qings@jlu.edu.cn

璃具有较大的拉曼增益系数, Bernier 等^[23]利用硫化砷玻璃光纤作为增益介质, 实现了工作波长为 $3.77 \mu\text{m}$ 的二级级联拉曼激光输出, 但输出功率仅为毫瓦量级。与硫系玻璃相比, 氟化物玻璃具有较高的抗激光损伤阈值, Fortin 等^[24]利用氟化物玻璃光纤作为增益介质, 研制出输出功率为 3.7 W 的 2231 nm 拉曼光纤激光器。与硫系玻璃和氟化物玻璃相比, 碲酸盐玻璃具有较大的拉曼频移, 理论研究表明, 利用碲酸盐玻璃光纤作为拉曼增益介质, 可以实现平均功率为数十瓦的 $3 \sim 5 \mu\text{m}$ 中红外拉曼激光输出^[25-27]。但是由于目前低损耗碲酸盐光纤的研制还不成熟, 尚未见到相关实验报道。近年来, 随着光纤制备技术的发展, 通过优化光纤结构, 空芯光纤可在中红外波段实现较低的传输损耗, 利用气体填充空芯光纤作为增益介质, 也可实现中红外波段的拉曼激光输出^[28-32]。2017 年, Xu 等^[28]利用 C_2H_2 填充的空芯光纤作为增益介质, 实现了功率为 $\sim 1.1 \text{ W}$ 的 $3.1 \mu\text{m}$ 激光输出。2019 年, Cui 等^[29]利用 CO_2 填充的空心石英光纤作为增益介质, 实现了 $4.3 \mu\text{m}$ 激光输出, 输出功率为 $\sim 82 \text{ mW}$ 。最近, 王泽锋等^[32]对光纤气体拉曼激光的相关研究进展进行了详细综述。此外, 当脉冲宽度为 $\sim 1 \text{ ps}$ 或更短的光子脉冲在具有负色散的拉曼增益光纤中传输时, 在脉冲内拉曼散射效应的作用下, 光子光谱会向长波方向移动, 进而获得宽调谐

拉曼孤子激光输出。Tang 等^[33]利用这一技术, 选用氟化物玻璃光纤作为增益介质, 研制出调谐范围覆盖 $2 \sim 4.3 \mu\text{m}$ 的中红外拉曼光子激光光源。近年来, 本课题组在高稳定性、高激光损伤阈值、高拉曼增益系数和大拉曼频移的红外玻璃光纤及相关激光器件方面开展了一系列研究工作, 研制出一种具有较好稳定性的新型氟碲酸盐玻璃光纤^[34], 并探索了其中红外拉曼激光器件方面的应用。本文主要介绍了几种红外玻璃材料的特点及相应的拉曼光纤激光器的研究进展, 并对其发展趋势进行了展望。

2 中红外拉曼激光的增益光纤材料

中红外波段拉曼光纤激光的性能由作为拉曼增益介质的红外玻璃光纤性质所决定。其中, 红外玻璃光纤材料的透过窗口决定了其可实现的拉曼激光输出的工作波长范围。图 1(a) 给出了几种典型玻璃材料的透过光谱^[35-38]。可以看出, 当波长 $> 2.5 \mu\text{m}$ 时, 石英玻璃的损耗迅速增加, 因此利用石英光纤作为拉曼增益介质难以获得工作波长 $> 2.5 \mu\text{m}$ 的拉曼激光输出。与石英玻璃相比, 碲酸盐、氟化物和硫/硒化物玻璃光纤具有宽的红外透过窗口, 利用碲酸盐、氟化物、 As_2S_3 、 As_2Se_3 玻璃光纤作为拉曼增益介质, 可实现的最长拉曼激光工作波长分别为 $5, 5.5, 7, 13 \mu\text{m}$ 。

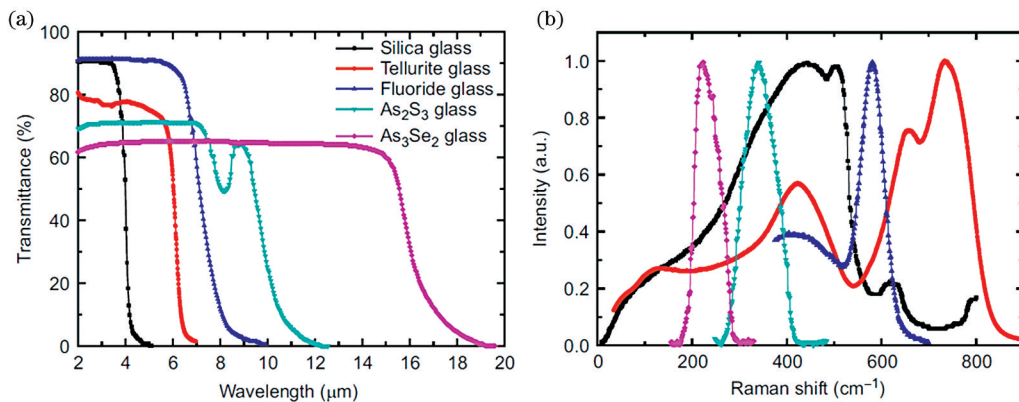


图 1 石英玻璃、碲酸盐玻璃、氟化物玻璃和硫系玻璃的基本光学性质^[35-38]。(a)透过光谱;(b)归一化拉曼增益谱
Fig. 1 Basic optical properties of silica, tellurite, fluoride, and chalcogenide glasses^[35-38]. (a) Transmission spectra; (b) normalized Raman gain spectra

拉曼增益特性是表征光纤材料在高功率中红外拉曼光纤激光研制方面应用潜力的关键指标之一。受激拉曼散射是一种受激非弹性散射。拉曼增益谱与三阶非线性极化率以及由光纤材料振动模式决定的自发拉曼散射截面相关。图 1(b) 给出了五类典型玻璃光纤材料的归一化拉曼散射光谱^[35-38]。表 1

列出了这五类材料的激光损伤阈值、拉曼频移量、峰值拉曼增益系数和非线性折射率^[18, 38-41]。石英玻璃的主拉曼频移峰位于 440 cm^{-1} , 对应于 Si-O 键的振动。碲酸盐玻璃具有多个拉曼频移峰, 其中位于 440 cm^{-1} 和 665 cm^{-1} 的拉曼频移峰对应于 $[\text{TeO}_4]$ 三角双锥的伸缩振动, 位于 750 cm^{-1} 的拉

曼频移峰对应于 $[\text{TeO}_3]$ 三方锥的伸缩振动。氟化物玻璃的主拉曼频移峰位于 580 cm^{-1} , 对应于 ZrF_6^{2-} 的对称伸缩振动。 As_2S_3 玻璃的主拉曼频移峰位于 325 cm^{-1} , 对应于 $[\text{AsS}_{3/2}]$ 正棱锥的对称伸缩

振动。 As_2Se_3 玻璃的主拉曼频移峰位于 250 cm^{-1} , 对应于As—Se键的振动。在上述几种光纤材料中, 碲酸盐玻璃具有最大的可用拉曼频移(750 cm^{-1}), 其拉曼增益系数为氟化物玻璃的35倍。

表 1 五类典型玻璃光纤材料的激光损伤阈值、拉曼频移量、峰值拉曼增益系数和非线性折射率^[18, 38-41]

Table 1 Comparison of laser damage threshold, peak Raman shift, peak Raman gain coefficient, and nonlinear refractive index of five typical fiber materials^[18, 38-41]

Glass	Damage threshold for $\sim 1\ \mu\text{m}$ picosecond lasers / $(\text{GW}\cdot\text{cm}^{-2})$	Peak Raman shift / cm^{-1}	Peak Raman gain coefficient @ $2\ \mu\text{m}$ / $(\text{m}\cdot\text{W}^{-1})$	Nonlinear refractive index / $(\text{m}^2\cdot\text{W}^{-1})$
Silica glass	400	440	5×10^{-14}	2.2×10^{-20}
Tellurite glass	100	750	1.2×10^{-12}	5.9×10^{-19}
Fluoride glass	200	580	3.4×10^{-14}	2.1×10^{-20}
As_2S_3 glass	1	350	3.75×10^{-12}	3×10^{-18}
As_2Se_3 glass	0.4	250	2.55×10^{-11}	1.1×10^{-17}

除拉曼增益光纤材料的透过损耗外, 其损伤阈值是限制中红外拉曼光纤激光器输出功率水平的另一主要参数。一般而言, 光纤材料的损伤阈值受泵浦光参数(包括工作波长、脉冲宽度、重复频率等)的影响较大。表 1 中列出了五种典型玻璃材料在 $\sim 1\ \mu\text{m}$ 皮秒激光泵浦下的损伤阈值。可以看出, As_2S_3 和 As_2Se_3 玻璃的损伤阈值较低, 不适用于研制高功率中红外拉曼光纤激光器。

此外, 为了实现脉冲拉曼激光输出, 还需要对拉

曼增益光纤的色散进行管理。光纤的色散包括材料色散和波导色散两部分。其中材料色散由其折射率随波长的变化规律决定。图 2 给出了五种典型玻璃材料的折射率和色散曲线。可以看出, 光纤材料的折射率随着波长的增加而逐渐减小。对于材料的色散曲线, 在特定波长处, 当群速度色散值变为零时, 这个波长被称为零色散波长。石英、碲酸盐、氟化物、 As_2S_3 和 As_2Se_3 玻璃的零色散波长分别为 $1.27, 2.15, 1.48, 4.89, 7.22\ \mu\text{m}$ 。

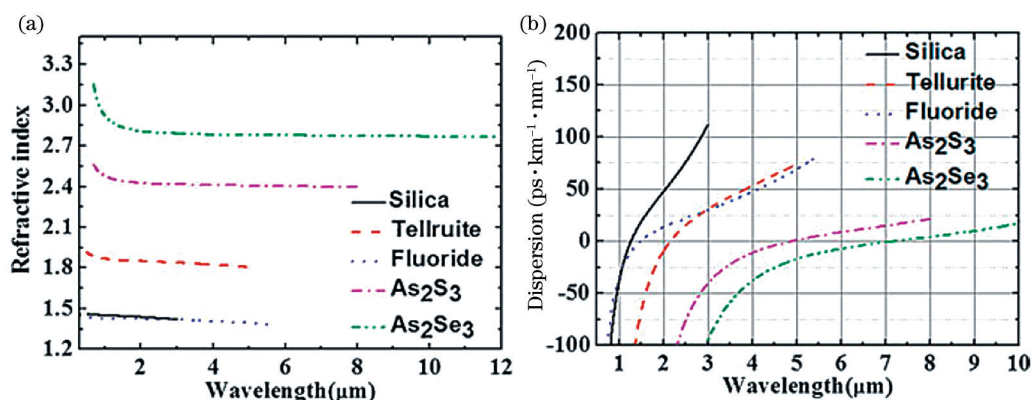


图 2 石英玻璃、碲酸盐玻璃、氟化物玻璃和硫系玻璃的材料色散特性^[42]。(a) 折射率曲线; (b) 色散曲线

Fig. 2 Material dispersion characteristics of silica, tellurite, fluoride, and chalcogenide glasses^[42].

(a) Refractive index curves; (b) dispersion curves

近年来, 面向高功率中红外拉曼光纤激光器的应用需求, 本研究组致力于开发具有高稳定性、高激光损伤阈值的新型红外光纤材料。经过大量的实验探索, 筛选出一种组分为 $\text{TeO}_2\text{-BaF}_2\text{-Y}_2\text{O}_3$ (TBY) 的氟碲酸盐玻璃。TBY 玻璃具有较宽的红外透过窗口($0.4\sim 6\ \mu\text{m}$), 其玻璃转变温度为 $424\text{ }^\circ\text{C}$, 高于之前报道的碲酸盐、氟化物、 As_2S_3 和 As_2Se_3 玻璃的玻璃转变温度, 比目前常用的商用高功率中红外光纤激光材料 ZBLAN ($\text{ZrF}_4\text{-BaF}_2\text{-LaF}_3\text{-AlF}_3\text{-$

NaF)玻璃($252\text{ }^\circ\text{C}$)的转变温度高出 $172\text{ }^\circ\text{C}$ 。TBY 玻璃还具有较好的抗潮解能力, 其相关热机械品质因子是 ZBLAN 玻璃的 1.56 倍^[34]。这些特性使得 TBY 玻璃在激光应用中可承受更大的热冲击。为了进一步研究 TBY 玻璃在拉曼光纤激光器方面的应用潜力, 本研究组采用对比法计算得到了 TBY 玻璃的拉曼增益谱, 结果如图 3 所示^[43], 激发源为 633 nm 激光器。研究结果显示, TBY 玻璃的拉曼频移为 780 cm^{-1} , 略大于之前报道的碲酸盐玻璃的拉曼

频移(750 cm^{-1}),其峰值拉曼增益系数为 $1.28 \times 10^{-12}\text{ m/W}@2\text{ }\mu\text{m}$,与碲酸盐玻璃相当(见表 1)。上述结果表明,基于 TBY 玻璃的氟碲酸盐玻璃光纤有望用于研制可长期稳定运转的高功率中红外波段拉曼光纤激光器。

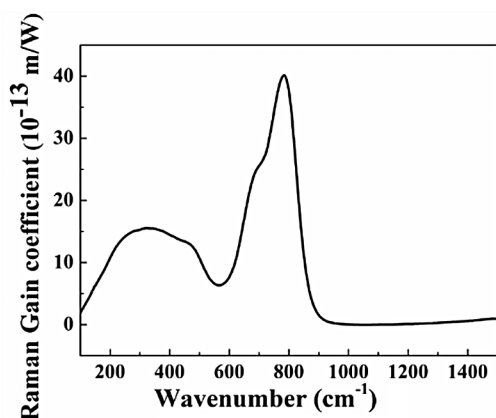


图 3 TBY 玻璃的拉曼增益谱^[43]

Fig. 3 Raman gain spectrum of TBY glass^[43]

3 基于红外玻璃光纤的拉曼激光器研究进展

3.1 基于硫系玻璃光纤的拉曼激光器

在上述几种红外光纤材料中,硫系玻璃具有最宽的红外透过窗口和大的拉曼增益系数,其拉曼增益系数比石英玻璃高 2~3 个数量级。2006 年, Jackson 等^[44]报道了第一台基于硫系玻璃光纤的拉曼光纤激光器。在该研究工作中,采用的拉曼增益介质为一段纤芯直径为 $6\text{ }\mu\text{m}$ 、长度为 1 m 的商用 As_2Se_3 玻璃光纤,泵浦源为工作波长位于 2051 nm 的掺铊光纤激光器,谐振腔由一个宽带反射镜和反射率为 22% 的光纤端面构成。在实验中,随着泵浦光功率的增大,先后实现了工作波长为 2062, 2102, 2166 nm 的拉曼激光输出,如图 4 所示^[44],对应的输出功率分别为 0.64, 0.2, 0.016 W。在该研究工作中,研究者将 2062 nm 波长处的拉曼散射归因于二维 As_2Se_3 网络结构中的“类聚合物”层间振动,并将 2102 nm 和 2166 nm 波长处的拉曼散射归因于层内键的弯曲和拉伸振动,其中 2166 nm 波长对应于传统拉曼增益峰,如图 1(b)所示。

2012 年, Bernier 等^[45]通过激光直写的方式,成功制备出硫系玻璃光纤光栅(FBG)。同时, $\sim 3\text{ }\mu\text{m}$ 波段高功率泵浦源(例如掺铊氟化物光纤激光器)的研究也取得了较大进展,这大大推动了中红外波段拉曼光纤激光器的发展。2013 年,研究者报道了第

一台基于硫系玻璃光纤的中红外($>3\text{ }\mu\text{m}$)拉曼激光器^[46]。在实验中,所选用的增益介质为一段纤芯直径为 $4\text{ }\mu\text{m}$ 的 As_2S_3 玻璃光纤(损耗 $<0.1\text{ dB/m}$),泵浦源为一台准连续掺铊氟化物玻璃光纤激光器。为了使产生的一阶斯托克斯波长远离硫系玻璃光纤中的 OH^- 吸收带,掺铊氟化物玻璃光纤激光器的工作波长被调整至 $3.005\text{ }\mu\text{m}$,其脉冲宽度为 5 ms,重复频率为 20 Hz,峰值功率为 10 W。选用该脉冲泵浦源是为了避免空间耦合过程中的热机械不稳定性。如图 5 所示^[46],工作波长位于 $3.34\text{ }\mu\text{m}$ 的一阶斯托克斯振荡器由直接刻写在长度为 3 m 的 As_2S_3 玻璃光纤两端的 FBG 构成,其反射率分别为 $>99\%$ 和 63%。图 6 给出了斯托克斯光输出功率随泵浦光功率的变化规律^[46]。在实验中,获得的 $3.34\text{ }\mu\text{m}$ 拉曼光纤激光输出的最大峰值功率为 0.6 W,相应的平均光功率为 47 mW,斜率效率为 39%。

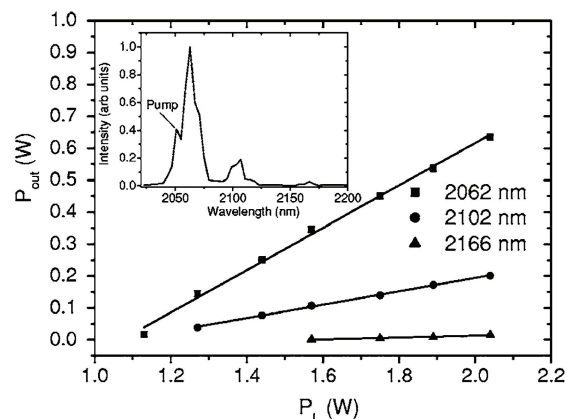


图 4 测得的硫系拉曼光纤激光器的输出功率随泵浦光功率的变化,插图为最大泵浦功率时的光纤激光器的输出光谱^[44]

Fig. 4 Measured output power from chalcogenide glass Raman fiber laser versus launched pump power with output spectrum of fiber laser at maximum pump power shown in inset^[44]

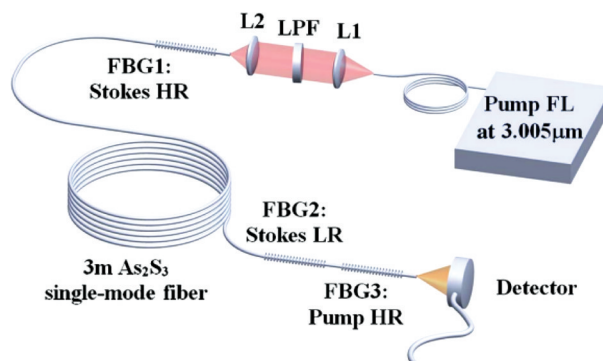


图 5 As_2S_3 基拉曼光纤激光器的装置示意图^[46]

Fig. 5 Experimental setup of As_2S_3 -based RFL^[46]

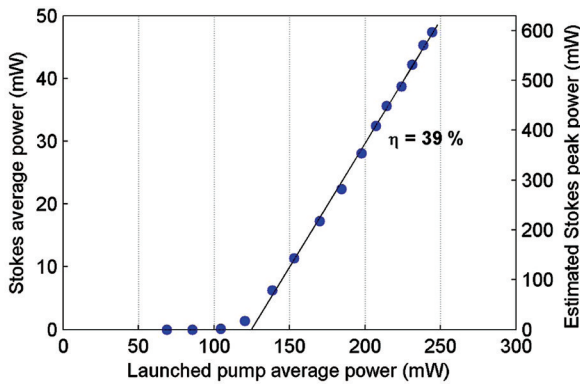


图 6 输出斯托克斯光的平均(左轴)和峰值(右轴)功率随 $3\ \mu\text{m}$ 泵浦光平均功率的变化^[46]

Fig. 6 Output Stokes average (left) and peak (right) powers versus $3\ \mu\text{m}$ launched pump average power^[46]

2014 年, Bernier 等^[23] 在前期工作的基础上, 进一步实现了工作波长位于 $3.77\ \mu\text{m}$ 的二级级联拉曼激光输出。图 7 给出了 As_2S_3 基 $3.77\ \mu\text{m}$ 级联拉曼光纤激光器的装置示意图。谐振腔由嵌套刻写在一段长度为 $2.8\ \text{m}$ 的 As_2S_3 玻璃光纤两端的两对 FBG 构成。工作波长位于 $3.34\ \mu\text{m}$ 的一阶斯托克斯光栅在较宽的光谱带宽 ($>10\ \text{nm}$) 内具有高的反射率 ($>99\%$), 如图 8 所示^[23], 这有效抑制了光谱宽化导致的能量损失。对于二阶斯托克斯光栅, 其初始反射率分别为 $>99\%$ 和 98% 。在实验中, 研究者通过热退火的方式, 改变了输出耦合器的反射率以优化激光器的性能。当输出耦合器的反射率降低至 80% 、泵浦功率为 $3.9\ \text{W}$ 时, 获得的 $3.77\ \mu\text{m}$ 拉

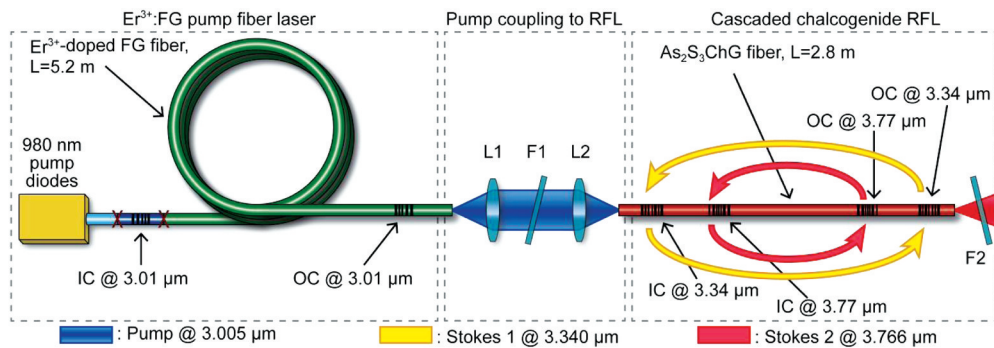


图 7 As_2S_3 基 $3.77\ \mu\text{m}$ 级联拉曼光纤激光器的装置示意图^[23]

Fig. 7 Experimental setup of As_2S_3 -based $3.77\ \mu\text{m}$ cascaded RFL^[23]

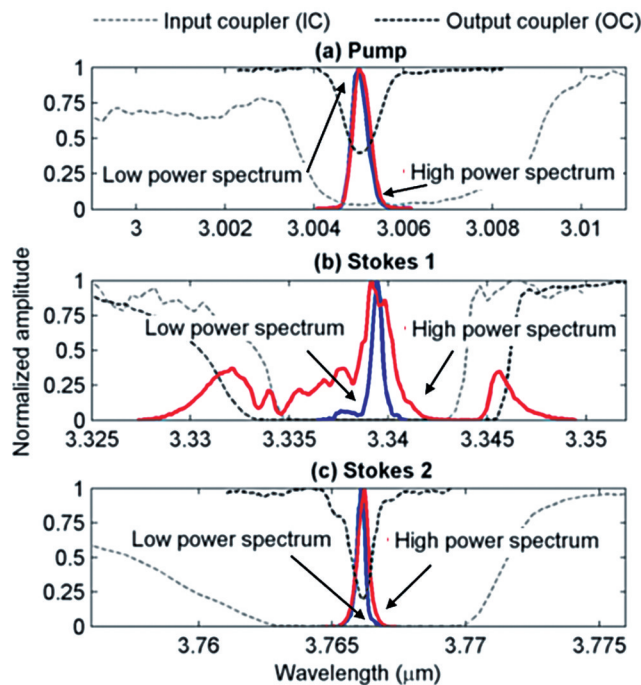


图 8 激光腔中不同光纤光栅的透过光谱(虚线)以及在阈值功率附近和最大泵浦峰值功率为 $3.9\ \text{W}$ 时的输出激光光谱^[23]。(a) 泵浦光栅; (b) 一阶斯托克斯光栅; (c) 二阶斯托克斯光栅

Fig. 8 Transmission spectra (dashed lines) of different fiber gratings in laser cavity and output laser spectra close to threshold power and at maximum peak pump power of $3.9\ \text{W}$ ^[23]. (a) Pump grating; (b) Stokes 1 grating; (c) Stokes 2 grating

曼激光输出的最大峰值功率为 112 mW (平均功率为 9 mW), 相应的斜率效率为 8.3%, 如图 9 所示^[23]。实验中获得激光效率和输出功率偏低, 这可能是由一阶斯托克斯光的光谱在腔内宽化导致的。最近, Peng 等^[47] 对基于硫系玻璃光纤的 4.3 μm 拉曼激光器进行了理论模拟, 但是由于缺少相应的泵浦源 ($\sim 3.9 \mu\text{m}$ 激光器), 目前尚未见到相关实验报道。另外, 硫系玻璃的激光损伤阈值较低, 限制了相应光纤在高功率中红外拉曼激光器方面的应用。

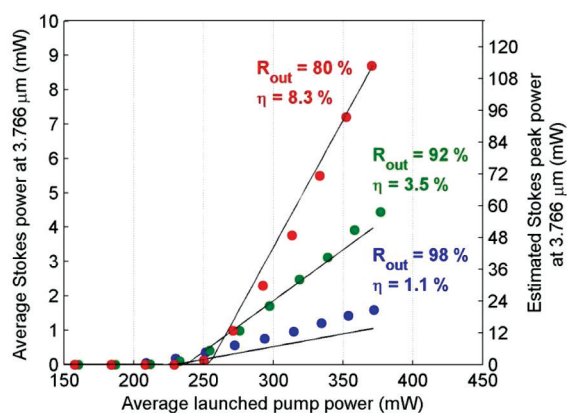


图 9 当输出耦合器的峰值反射率为 98%、92% 和 80% 时, 3.766 μm 斯托克斯光的平均输出功率 (左轴) 和估计的峰值功率 (右轴) 随泵浦光功率的变化规律, 实线为相应的模拟结果^[23]

Fig. 9 Average output power (left) of 3.766 μm Stokes and estimated peak power (right) versus launched pump power for output couplers with peak reflectivity of 98%, 92%, and 80%, and solid lines indicating simulated results^[23]

3.2 基于氟化物玻璃光纤的拉曼激光器

与硫系玻璃光纤相比, 氟化物玻璃光纤具有较高的激光损伤阈值, 是目前研制高功率中红外光纤激光光源常用的增益介质之一。2011 年, Fortin 等^[48] 报道了第一台基于氟化物玻璃光纤的拉曼激光器, 其实验装置如图 10 所示。在实验中, 研究者采用的泵浦源为工作波长位于 1940 nm 的掺铥光纤激光器, 拉曼增益介质为一段长度为 29 m 的氟化物玻璃光纤, 谐振腔由直接刻写在拉曼增益光纤两端的一对 FBG 构成。为了降低拉曼激光阈值, 实验中选用了具有高反射率的 FBG (反射率分别为 99% 和 95%), 同时在光栅刻写完成后在 100 $^{\circ}\text{C}$ 温度下对其进行了退火处理以提高光栅的稳定性。当泵浦光功率为 7 W 时, 获得了输出功率为 0.58 W 的 2185 nm 拉曼激光输出, 如图 11 所示^[48]。在较

低泵浦光功率下, 斜率效率为 29%, 随着泵浦光功率的增大, 斜率效率减小至 14%。这可能是由于随着光功率的增加, 光纤中热效应引起输出端 FBG 的反射光谱发生了移动。另外, 腔内激光的光谱宽化也可能是导致效率降低的原因之一。

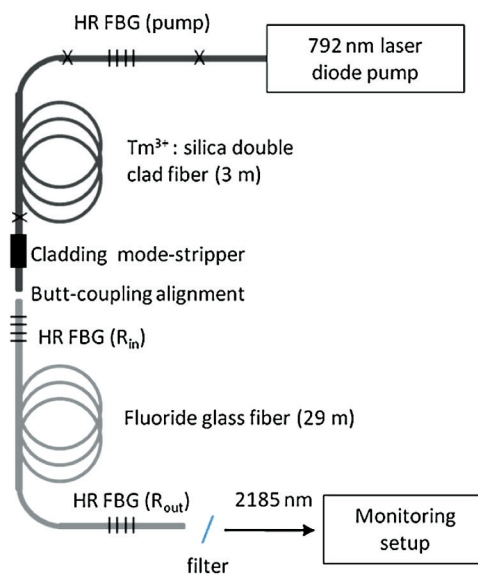


图 10 2185 nm 全光纤拉曼激光器的装置示意图^[48]

Fig. 10 Experimental setup of the all-fiber Raman laser operating at 2185 nm^[48]

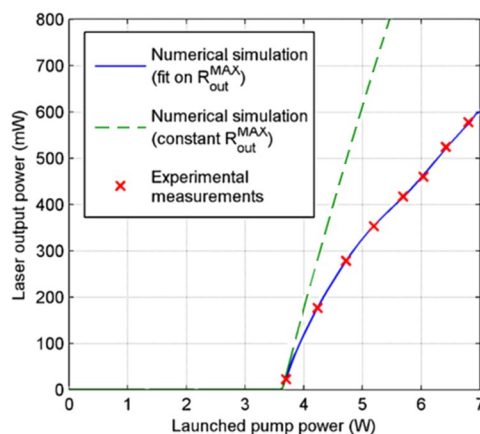


图 11 2185 nm 拉曼激光输出功率随泵浦光功率的变化规律^[48]

Fig. 11 Output power of 2185 nm Raman laser versus launched pump power^[48]

为了进一步优化氟化物拉曼光纤激光器的性能, Fortin 等^[24] 在上述工作的基础上, 搭建了嵌套腔结构的拉曼光纤激光器以提高其拉曼转换效率、降低激光阈值, 实验装置如图 12 所示。实验中选用的拉曼增益光纤——氟化物玻璃光纤与掺铥双包层石英光纤的模场匹配度高, 保证了两光纤之间的高效耦合和低的腔内损耗。同时, 实验系统中还加入珀尔帖冷却器以避免高功率运转系统中的热效应

导致光纤对准失调;将 FBG 放置在带冷却装置的 V 型槽中,以避免激光运转过程中的热效应导致 FBG 反射波长红移。当 791 nm 泵浦激光功率增加至 36 W 时,获得了输出功率为 3.66 W 的 2231 nm 拉曼激光输出,相应的斜率效率为 15%^[24]。图 13 所示为 2231 nm 拉曼激光输出功率随泵浦光功率的变化规律^[24]。值得注意的是,拉曼光纤激光器的嵌套腔结构不能直接给出 1981 nm→2231 nm 的拉曼

转换效率。该斜率效率(15%)是两次波长转换(791 nm→1981 nm 和 1981 nm→2231 nm)的结果。为了探究氟化物玻璃光纤在中红外拉曼激光器方面的应用潜力,研究者分别对 1.9 μm 激光和 2.75 μm 激光泵浦的基于氟化物玻璃光纤的级联拉曼激光器进行了理论模拟^[49-50],但是由于目前氟化物玻璃光纤光栅的制备工艺尚不成熟,尚未见到基于氟化物玻璃光纤的级联拉曼光纤激光器的相关实验报道。

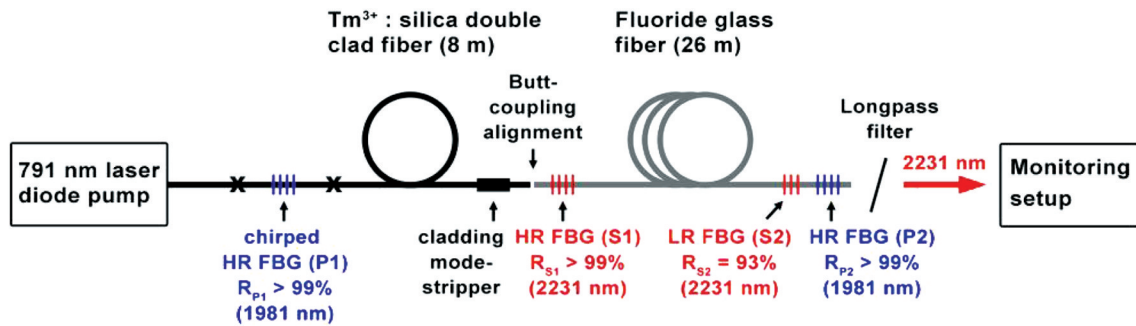


图 12 嵌套腔结构的氟化物拉曼光纤激光器的装置示意图^[24]

Fig. 12 Experimental setup of nested cavity fluoride Raman fiber laser^[24]

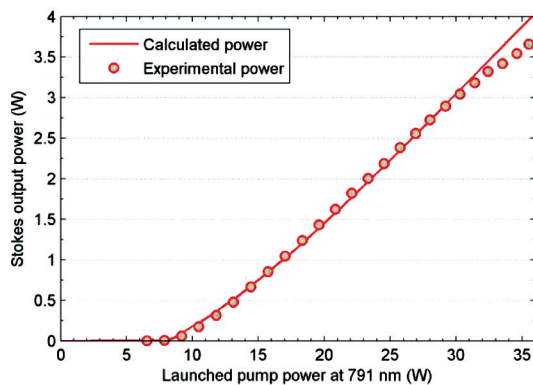


图 13 2231 nm 拉曼激光输出功率随泵浦光功率的变化规律^[24]

Fig. 13 Output power of 2231 nm Raman laser versus launched pump power^[24]

为了获得更长工作波长的中红外光纤激光光源,研究者提出利用另一种基于拉曼过程的孤子自频移效应研制高效连续可调谐的中红外脉冲激光光源。氟化物玻璃光纤在中红外波段具有负的群速度色散,适用于研制中红外拉曼孤子激光器。2014 年, Liu 等^[51]首先设计了基于氟化物玻璃光纤的中红外拉曼孤子激光光源。理论模拟结果表明,利用工作波长为 1.93 μm 超短脉冲激光泵浦色散调控的氟化物玻璃光纤,可实现调谐波长范围覆盖 1.93~3.95 μm 的中红外拉曼孤子激光输出。2016 年, Tang 等^[33]利用 1.9 μm 飞秒激光泵浦一段 2 m 长的氟化物玻璃光纤,实现了调谐波长范围覆盖 2~4.3 μm 的中红外拉曼孤子激光光源,如图 14 所示。

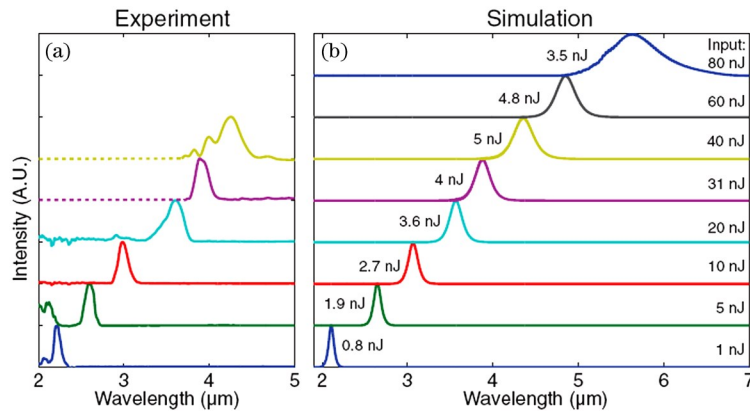


图 14 2 m 长 InF₃ 玻璃光纤中的不同波长处的红移孤子光谱^[33]。(a)测得的结果;(b)计算得到的结果

Fig. 14 Spectra of redshifted soliton at different wavelengths in 2 m long InF₃ glass fiber^[33].

(a) Measured results; (b) calculated results

实验中 1.9 μm 泵浦激光的脉冲能量为 120 nJ, 脉冲宽度为 70 fs, 获得的可调谐孤子光源的脉冲宽度为 60~140 fs, 峰值功率为 20~75 kW。理论计算结果表明, 利用该方案有望获得工作波长为 5.6 μm 的少周期孤子激光。2016 年, 加拿大拉瓦尔大学的 Duval 等^[52] 利用 2.8 μm 飞秒激光泵浦氟化物玻璃光纤, 实现了调谐波长范围覆盖 2.8~3.6 μm 的中红外拉曼孤子激光输出, 其中在 3.4 μm 波长处获得了最大脉冲能量为 37 nJ 的孤子激光输出, 其平均功率为 2.1 W, 相应的峰值功率估计可超过 200 kW。但是, 氟化物玻璃易潮解、玻璃转变温度较低, 这限制了相应光纤激光光源输出功率的进一步提升。

3.3 基于碲酸盐玻璃光纤的拉曼激光器

与氟化物玻璃相比, 碲酸盐玻璃具有好的稳定性和大的拉曼频移, 其拉曼增益系数为氟化物玻璃的 35 倍, 有望用于实现高功率拉曼光纤激光器。2003 年, Mori 等^[53] 报道了一种可用于研制拉曼光纤放大器和激光器的碲酸盐玻璃光纤, 其损耗为 0.02 dB/m@1550 nm。利用碲酸盐玻璃光纤作为拉曼增益介质, Qin 等^[54] 研制出工作波长调谐范围覆盖短波长+常规波长+长波长+超长波长波段 (1495~1600 nm, 带宽 > 100 nm) 的拉曼光纤激光器。在中红外拉曼光纤激光器方面, 原理上, 以碲酸盐玻璃光纤作为拉曼增益介质, 以目前较成熟的

~2 μm 波段光纤激光器作为泵浦源, 利用级联拉曼技术, 通过 4 级拉曼频移, 就可以把激光波长扩展至 5 μm , 如图 15 所示。美国亚利桑那大学、中国国防科技大学以及合肥工业大学等单位的多个研究团队先后开展了相关理论研究^[25-27]。图 16 给出了当 2.8 μm 激光作为泵浦源且泵浦功率为 20 W 时, 计算得到的不同工作波长下碲酸盐拉曼光纤激光器的输出功率^[25]。相关结果表明, 碲酸盐玻璃光纤有望用于研制输出功率为十瓦量级的高功率 2~5 μm 中红外拉曼光纤激光器。虽然该结果是理论研究结果, 但是相信在不久的将来, 通过提升碲酸盐玻璃光纤的质量, 可实现高功率中红外碲酸盐拉曼光纤激光器。

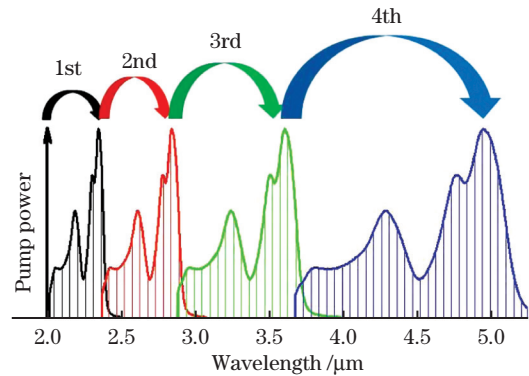


图 15 四级碲酸盐拉曼光纤激光器的拉曼频移原理示意图
Fig. 15 Principle diagram of Raman frequency shift of fourth-order tellurite Raman fiber laser

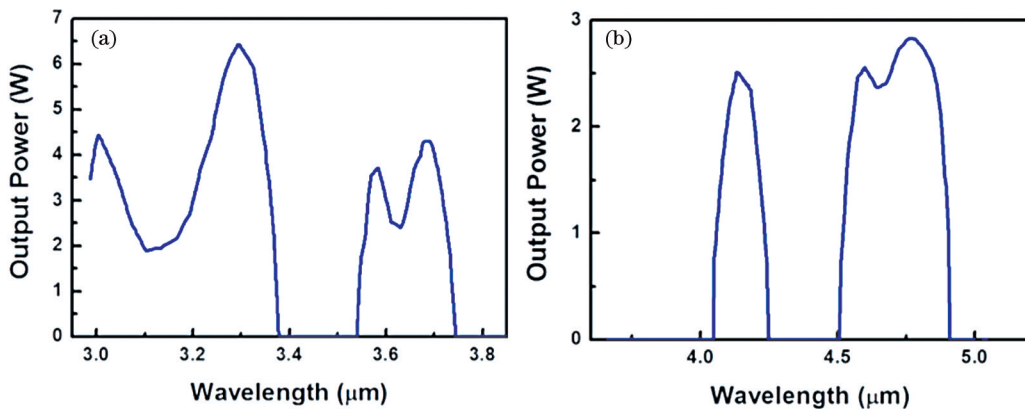


图 16 当 2.8 μm 泵浦激光功率为 20 W 时, 计算得到的拉曼激光输出功率随波长的变化曲线^[25]。
(a) 1 级拉曼激光; (b) 2 级拉曼激光

Fig. 16 Measured output power of Raman laser versus wavelength at pump power of 20 W at 2.8 μm ^[25].

(a) 1st-order Raman laser; (b) 2nd-order Raman laser

在基于碲酸盐玻璃光纤的拉曼孤子激光器研究方面, 2012 年, Liu 等^[55] 利用工作波长为 1.56 μm 的掺铒飞秒光纤激光器泵浦一段纤芯直径为 1.1 μm 的碲酸盐微结构光纤, 实现了调谐波长覆盖 1.6~2.2 μm 的拉曼孤子激光。2015 年, Koptev

等^[56] 以碲酸盐微结构光纤作为增益介质, 以 2 μm 掺铥飞秒光纤激光器作为泵浦源, 研制出调谐波长覆盖 2.1~2.65 μm 的拉曼孤子激光光源, 实验结果如图 17 所示, 所获得的孤子激光的脉冲宽度为 100 fs 量级。

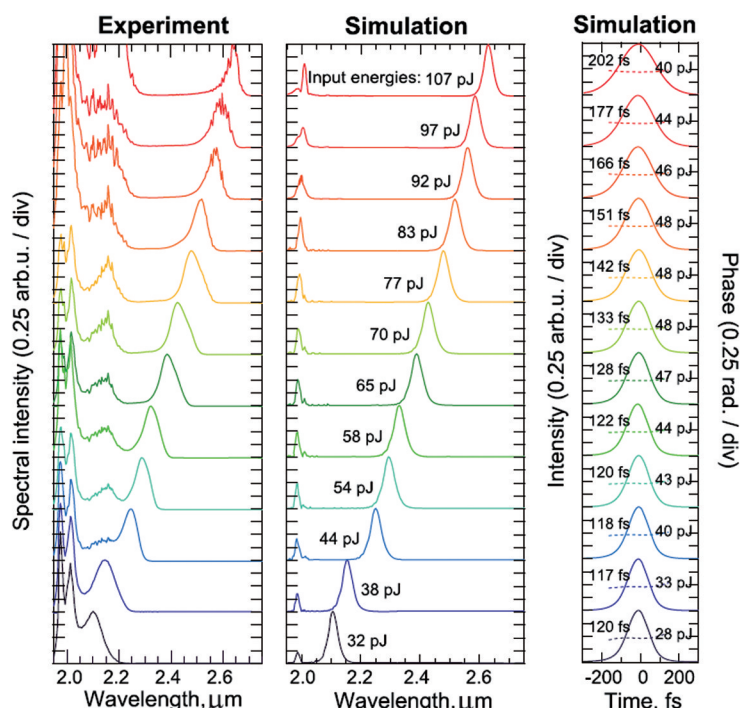


图 17 2 μm 飞秒激光泵浦下 50 cm 长碲酸盐微结构光纤输出的光谱和相应的理论光谱及滤波器的拉曼孤子时域谱^[56]

Fig. 17 Measured output spectra of 50-cm long tellurite micro-structured fiber pumped at 2 μm femtosecond laser, corresponding calculated spectra, and filtered Raman soliton spectra in time domain^[56]

本课题组近年来一直在开展氟碲酸盐、碲酸盐和氟化物玻璃光纤及相关激光器件的研究工作,筛选出一种具有较高稳定性的氟碲酸盐玻璃光纤以研制高功率中红外光纤激光器。考虑到在光纤中传输的红移拉曼孤子在高阶色散的微扰下会向正常色散区以色散波的形式释放一部分能量,为了获得宽调谐范围的中红外色散波,本课题组设计并制备出双折射氟碲酸盐微结构光纤,其光纤截面如图 18 中的插图所示^[57]。光纤纤芯形状为不规则椭圆形,长轴和短轴的尺寸分别为 1.08 μm 和 0.7 μm,空气孔尺

寸为 3~5 μm,1560 nm 处的双折射度为 3.5×10^{-2} 。使用商用模拟软件 Mode Solution 计算了该光纤快轴和慢轴中的 LP01 模式的群速度色散曲线,如图 18(a)所示。该光纤快轴上的两个零色散波长分别为 1000 nm 和 2224 nm,慢轴上的两个零色散波长分别为 897 nm 和 2042 nm。图 18(b)给出了相应的光纤受限损耗曲线。计算得到光纤快轴和慢轴中 LP01 模式的非线性系数分别为 $4451 \text{ km}^{-1} \cdot \text{W}^{-1}$ 和 $5322 \text{ km}^{-1} \cdot \text{W}^{-1}$ @1560 nm。使用回切法测得该双折射光纤在 1560 nm 处的传输损耗为 0.14 dB/cm。

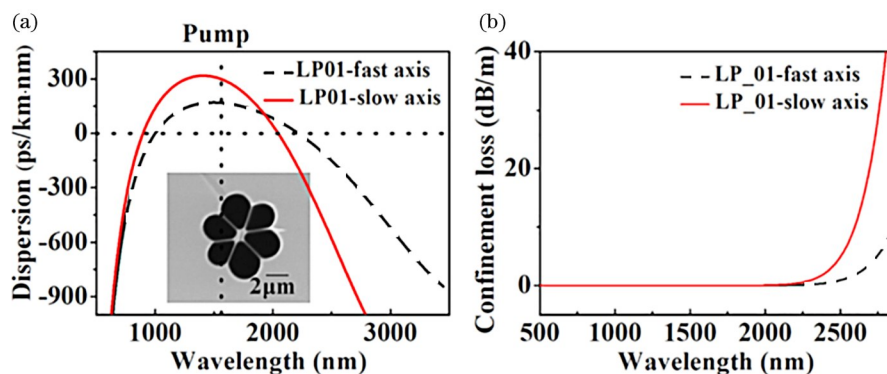


图 18 双折射氟碲酸盐微结构光纤快轴和慢轴中的 LP01 模式的特征参数^[57]。(a)群速度色散曲线,

插图为双折射氟碲酸盐微结构光纤的截面扫描电镜照片;(b)受限损耗曲线

Fig. 18 Characteristic parameters of LP01 modes propagating in fast and slow axes of birefringent fluorotellurite micro-structured fibers^[57]. (a) Group velocity dispersion curves, and cross-sectional scanning electron micrograph of birefringent fluorotellurite microstructured fiber shown in inset; (b) confinement loss curves

以上述双折射氟碲酸盐微结构光纤作为增益介质,利用实验室自制的 1560 nm 掺铒飞秒光纤激光器作为泵浦源,搭建了中红外光纤激光光源实验装置。当 1560 nm 飞秒激光激发光纤快轴时,1560 nm 飞秒激光处于光纤快轴的反常色散区。在光纤色散和非线性效应的共同作用下,高阶孤子劈裂产生基阶孤子,之后在脉冲拉曼散射的作用下,孤子向长波方向移动。当孤子移动到光纤快轴的第二个零色散波长处时,由于群速度色散曲线的斜率为负,孤子自频移抵消效应发生^[12],同时在第二个零色散波长右侧(2725 nm 波长)处观察到红移色散波,随着泵浦光功率继续增大,红移色散波的波长从

2725 nm 逐渐蓝移至 2680 nm,如图 19(a)所示^[57]。当 1560 nm 飞秒激光激发光纤慢轴时,获得了调谐波长覆盖 2260~2400 nm 的红移色散波,如图 19(b)所示^[57]。考虑产生的中红外色散波波长与光纤的第二个零色散波长有关,为了获得更长波长的中红外色散波,本课题组设计了纤芯直径分别为 1.08,1.19,1.29,1.4,1.51,1.62 μm 的六种微结构光纤(命名为光纤 1~6),其第二个零色散波长分别为 2224,2468,2704,2937,3171,3398 nm。模拟结果显示,通过设计具有不同零色散波长的氟碲酸盐微结构光纤,可将中红外色散波的工作波长拓展至 >3 μm,如图 20 所示^[58]。

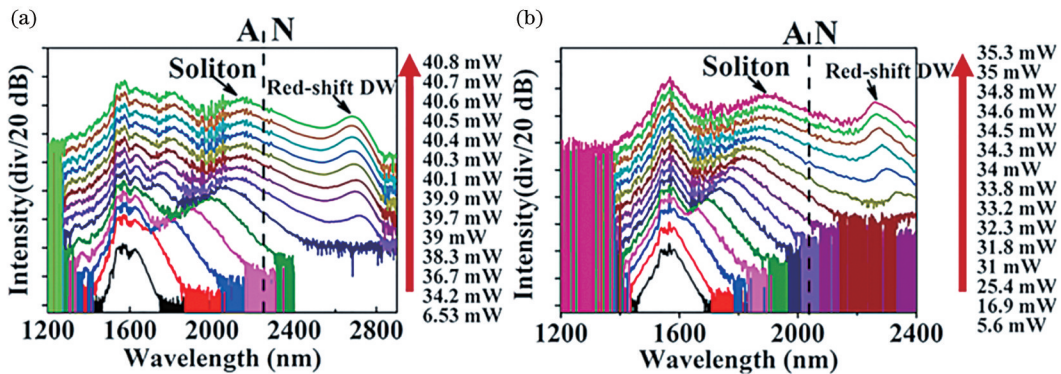


图 19 双折射氟碲酸盐微结构光纤中色散波产生实验结果^[57]。1560 nm 飞秒激光沿光纤(a)快轴和(b)慢轴传播时,光纤中的输出光谱随激发光平均功率的演化图

Fig. 19 Experimental results of dispersive wave generation in birefringent fluorotellurite microstructured fiber^[57]. Evolutions of output spectra in fiber with average power of excited light as 1560 nm femtosecond laser propagates along (a) fast axis and (b) slow axis

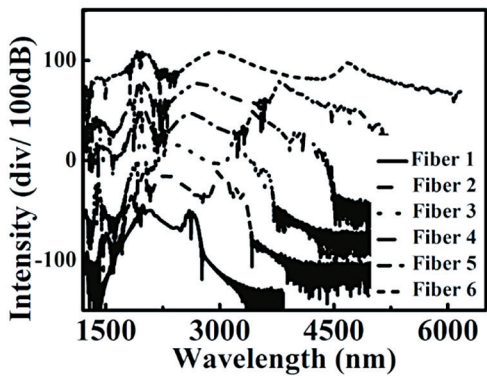


图 20 当光纤快轴被激发时,计算得到的光纤 1~6 的输出光谱^[58]

Fig. 20 Calculated output spectra when pump laser is polarized along fast axis of fibers 1-6^[58]

2018 年,本课题组以 1960 nm 飞秒光纤激光器为泵浦源,以芯径为 2.7 μm、长度为 50 cm 的氟碲酸盐玻璃光纤作为非线性介质,搭建了中红外拉曼孤子激光器^[43]。该氟碲酸盐玻璃光纤具有两个零色散波长,分别为 1353 nm 和 3663 nm,其在 1960 nm

波长处的非线性系数为 ~278 km⁻¹·W⁻¹。随着泵浦光功率的提升,最终获得了波长调谐范围覆盖 1.96~2.82 μm 的中红外拉曼孤子激光,结果如图 21 所示^[43]。

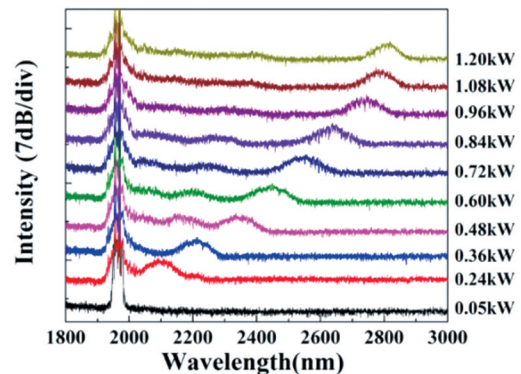


图 21 氟碲酸盐光纤输出的光谱随 1960 nm 飞秒光纤激光峰值功率的演化图^[43]

Fig. 21 Dependence of measured spectra from the fluorotellurite fiber on peak pump power of 1960 nm femtosecond fiber laser^[43]

通常,当高阶孤子(来自泵浦源)在具有负色散的光纤中传输时,在高阶色散的微扰作用下,高阶孤子会劈裂为多个具有不同特征(包括脉冲能量、脉冲宽度、中心波长等)的基阶拉曼孤子,进而产生超宽带的谱(超连续谱)^[18]。但是,由于拉曼孤子是一个一个产生的,将产生的所有拉曼孤子置于某一设定波长下仍具有较大挑战性。最近,本课题组提出利用拉锥光纤作为增益介质,结合拉曼孤子自频移和孤子自频移抵消效应,将产生的所有拉曼孤子置于某设定波长下,从而实现特定波长处的“拉曼孤子

雨”,实验原理如图 22 所示^[59]。选用工作波长位于未拉锥光纤反常色散区的超短脉冲光纤激光器作为泵浦源,随着泵浦光功率的增大,在孤子劈裂和孤子自频移效应的作用下,将产生多个具有不同波长的拉曼孤子。当拉曼孤子进入拉锥过渡区后,由于光纤非线性系数急剧增大,所有拉曼孤子加速向光纤第二个零色散波长处移动。由于存在孤子自频移抵消效应,所有加速移动的拉曼孤子最终停止在光纤第二个零色散波长附近,从而在光纤的第二个零色散波长附近形成“拉曼孤子雨”。

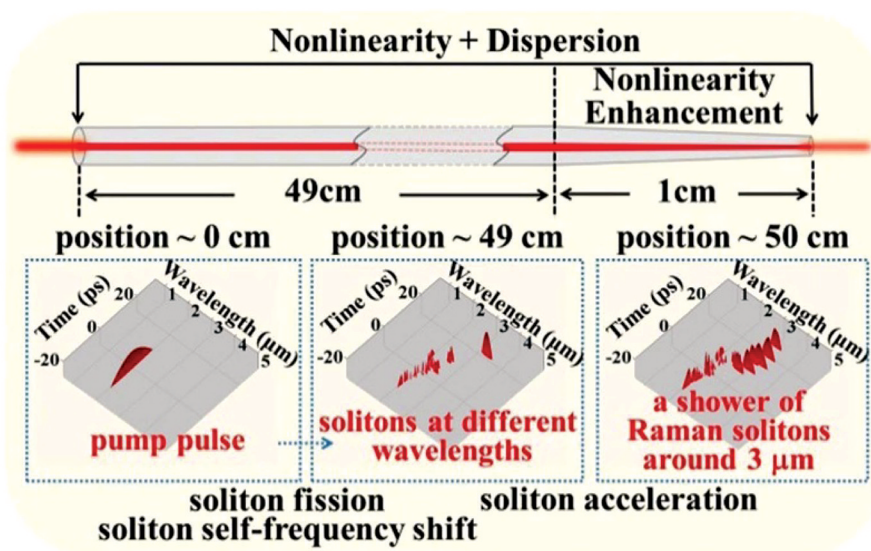


图 22 在设定波长处产生“拉曼孤子雨”的原理图^[59]

Fig. 22 Principle diagram of shower of Raman solitons generated at preset wavelength^[59]

基于上述实验原理,本课题组设计并制备出一种拉锥氟碲酸盐玻璃光纤,其包括一段未拉锥区和一段拉锥过渡区。在拉锥过渡区,光纤芯径从 5.2 μm 逐渐

减小至 2.3 μm ,如图 23 所示^[59]。在输出端,光纤具有两个零色散波长,分别为 1289 nm 和 3090 nm。以该光纤作为增益介质,利用工作波长为 1960 nm 的

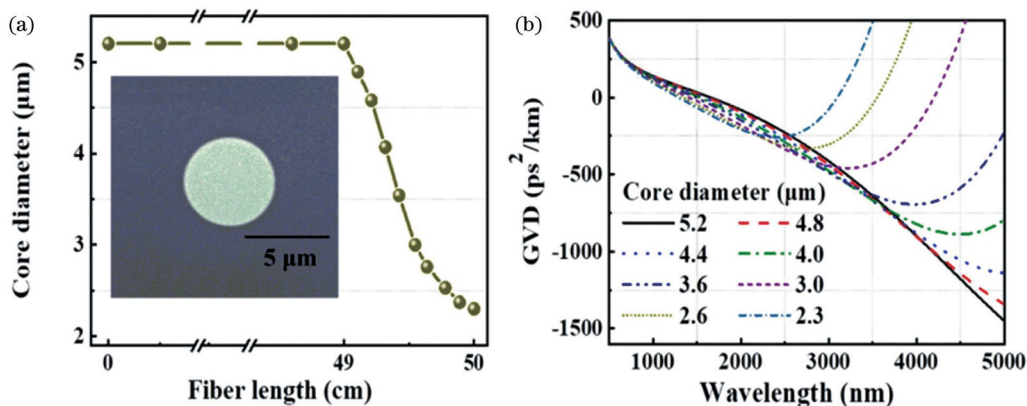


图 23 非线性光纤参数^[59]。(a)拉锥氟碲酸盐玻璃光纤芯径随光纤长度的变化关系,插图为未拉锥氟碲酸盐玻璃光纤的截面扫描电镜照片;(b)计算得到的不同芯径氟碲酸盐玻璃光纤的群速度色散曲线

Fig. 23 Parameters of nonlinear fiber^[59]. (a) Core diameter of tapered fluorotellurite fiber versus fiber length with cross-sectional scanning electron micrograph of untapered fluorotellurite fiber shown in inset; (b) calculated GVD curves for different core diameters of fluorotellurite fibers

皮秒光纤激光器作为泵浦源,实现了 $3\ \mu\text{m}$ 波长处的“拉曼孤子雨”,实验结果如图 24 所示^[59]。 $3\ \mu\text{m}$ 波长附近的能量占总输出能量的 87%,能量转换效率约为 39%。原则上,利用该方案,通过优化光纤色散分布和泵浦激光参数,可在光纤材料透过窗口内任意波长处产生高效率的“拉曼孤子雨”。另外,本课题组还利用自制的氟硝酸盐玻璃光纤作为非线性介质,研制出光谱范围为 $0.6\sim 5.4\ \mu\text{m}$ 的宽带超

连续光源和平均功率为 22.7 W 的高功率中红外超连续光源^[60-62],验证了该氟硝酸盐玻璃光纤在实用化高功率中红外光纤激光器研制方面的应用潜力。通过进一步优化光纤制备工艺并提高氟硝酸盐玻璃光纤的质量,结合光纤色散调控及高稳定性中红外光纤光栅等器件的研制,相信在不久的将来,可实现输出功率为十瓦甚至百瓦量级的中红外拉曼光纤激光器。

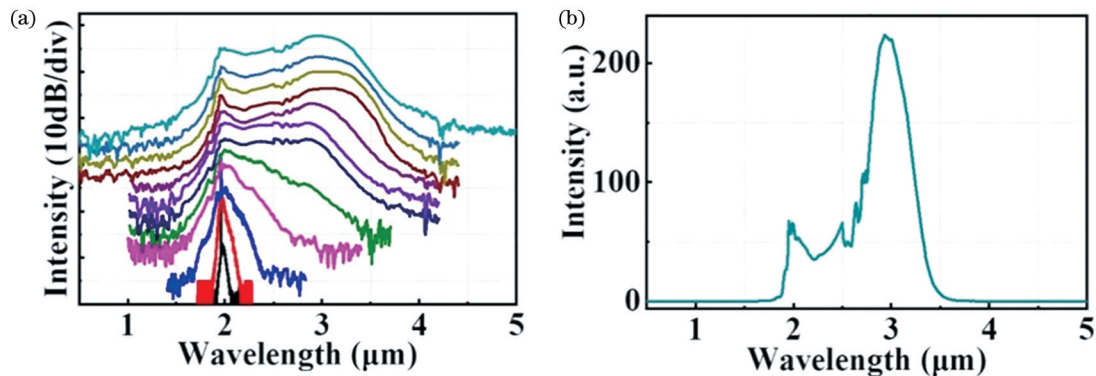


图 24 实验结果^[59]。(a)不同平均功率泵浦光下测得的拉锥光纤输出的光谱,从下往上的平均泵浦光功率分别为 0.48, 0.65, 0.84, 1.0, 1.14, 1.30, 1.52, 1.74, 2.0, 2.2, 2.48, 2.7 W; (b)当泵浦光功率为 2.7 W 时,测得的线性坐标下的输出光谱

Fig. 24 Experimental results^[59]. (a) Measured output spectra of tapered fiber for different average pump powers of 0.48, 0.65, 0.84, 1.0, 1.14, 1.30, 1.52, 1.74, 2.0, 2.2, 2.48, and 2.7 W (from bottom to top); (b) measured output spectrum in linear scale for pump power of 2.7 W

4 结束语

高功率中红外光纤激光器在基础科学研究、环境监测、生物医疗和国防安全等领域具有广泛的应用需求。利用光纤中的受激拉曼散射效应是实现高功率中红外光纤激光输出的有效途径。目前利用硫化物、氟化物、硝酸盐等玻璃光纤作为拉曼增益介质,实现了工作波长位于 $3.77\ \mu\text{m}$ 的级联拉曼激光输出以及调谐波长覆盖 $2\sim 4.3\ \mu\text{m}$ 的拉曼孤子激光输出。但受中红外光纤材料特点及相关光纤和器件制备技术的限制,目前关于中红外波段拉曼光纤激光器的研究正处于发展阶段,其输出功率还比较低,为瓦量级。实现高功率中红外波段拉曼光纤激光器的关键在于具有大拉曼频移、高抗激光损伤阈值、高稳定性、低损耗的中红外增益光纤以及相应光纤光栅等器件研究方面的突破。本课题组最近研制出一种具有较高稳定性和较高抗激光损伤阈值的新型氟硝酸盐玻璃光纤,并初步验证了其在高功率、高效率中红外光纤激光器研制方面的应用潜力。通过优化氟硝酸盐玻璃光纤的结构参数及泵浦激光参数,可实现调谐波长覆盖整个中红外 $2\sim 5\ \mu\text{m}$ 波段

的拉曼孤子激光光源。通过优化氟硝酸盐光纤的制备工艺、进一步降低光纤的损耗,并结合中红外光纤光栅等器件制备技术的发展,选用合适的热管理模式,有望研制出输出功率为十瓦甚至百瓦量级的中红外拉曼光纤激光器。

参 考 文 献

- [1] Diddams S A, Hollberg L, Mbele V. Molecular fingerprinting with the resolved modes of a femtosecond laser frequency comb[J]. Nature, 2007, 445(7128): 627-630.
 - [2] Mandon J, Guelachvili G, Picqué N. Fourier transform spectroscopy with a laser frequency comb [J]. Nature Photonics, 2009, 3(2): 99-102.
 - [3] Lin Z Y, Jia X Y, Wang C L, et al. Ionization suppression of diatomic molecules in an intense midinfrared laser field[J]. Physical Review Letters, 2012, 108(22): 223001.
 - [4] Xie K, Cao Y. Research on the design and implementation of long-distance infrared laser wireless communication system[J]. Digital Technology and Application, 2016(12): 41.
- 谢崑, 曹屹. 关于远距离红外激光无线通信系统设计

- 与实现的研究[J]. 数字技术与应用, 2016(12): 41.
- [5] Taccheo S. Fiber lasers for medical diagnostics and treatments: state of the art, challenges and future perspectives[J]. Proceedings of SPIE, 2017, 10058: 1005808.
- [6] Qian L J. Development and integration of wide tuning mid infrared femtosecond and narrow band long pulse laser devices[J]. Infrared and Laser Engineering, 2006, 35(S3): 43.
钱列加. 宽调谐中红外飞秒及窄带长脉冲激光器件的研制和集成[J]. 红外与激光工程, 2006, 35(S3): 43.
- [7] Deng Y, Zhu Q H, Zeng X M, et al. The generation and recent progress of ultrashort mid-infrared pulse[J]. Laser & Optoelectronics Progress, 2006, 43(8): 21-26.
邓颖, 朱启华, 曾小明, 等. 超短中红外激光脉冲的产生及其发展状况[J]. 激光与光电子学进展, 2006, 43(8): 21-26.
- [8] Yu Z J, Han H N, Wei Z Y. Progress in dual-comb spectroscopy[J]. Physics, 2014, 43(7): 460-467.
于子蛟, 韩海年, 魏志义. 双光梳光谱学研究进展[J]. 物理, 2014, 43(7): 460-467.
- [9] Chen L Z, Wen S C. Recent advances and methods of optical parametric generation and amplification for tunable ultra-short mid-infrared pulse[J]. Laser & Optoelectronics Progress, 2011, 48(8): 081902.
陈列尊, 文双春. 可调谐超短中红外激光脉冲的参变产生与放大及其最新进展[J]. 激光与光电子学进展, 2011, 48(8): 081902.
- [10] Meng D D, Zhang H B, Li M S, et al. Laser technology for direct IR countermeasure system[J]. Infrared and Laser Engineering, 2018, 47(11): 1105009.
孟冬冬, 张鸿博, 李明山, 等. 定向红外对抗系统中的激光器技术[J]. 红外与激光工程, 2018, 47(11): 1105009.
- [11] Li S S, Yan X S. Research on mid-infrared laser source in laser countermeasure system and key technology[J]. Electro-Optic Technology Application, 2018, 33(5): 19-23.
李森森, 闫秀生. 激光对抗系统中的中红外激光源及其关键技术[J]. 光电技术应用, 2018, 33(5): 19-23.
- [12] Jackson S D. Towards high-power mid-infrared emission from a fibre laser[J]. Nature Photonics, 2012, 6(7): 423-431.
- [13] Aydin Y O, Fortin V, Vallée R, et al. Towards power scaling of 2.8 μm fiber lasers[J]. Optics Letters, 2018, 43(18): 4542-4545.
- [14] Jia S J, Jia Z X, Yao C F, et al. 2875 nm lasing from Ho^{3+} -doped fluoroindate glass fibers [J]. IEEE Photonics Technology Letters, 2018, 30(4): 323-326.
- [15] Jia S J, Jia Z X, Yao C F, et al. Ho^{3+} doped fluoroaluminate glass fibers for 2.9 μm lasing[J]. Laser Physics, 2018, 28(1): 015802.
- [16] Maes F, Fortin V, Bernier M, et al. 5.6 W monolithic fiber laser at 3.55 μm [J]. Optics Letters, 2017, 42(11): 2054-2057.
- [17] Maes F, Fortin V, Poulain S, et al. Room-temperature fiber laser at 3.92 μm [J]. Optica, 2018, 5(7): 761-764.
- [18] Agrawal G P. Nonlinear fiber optics [M]. New York: Academic Press, 2013.
- [19] Zhang L, Liu C, Jiang H W, et al. A 1.3 kW Raman fiber laser [C]//International Photonics and Optoelectronics Meetings, June 18-21, 2014, Wuhan. Washington, D.C.: OSA, 2014: FF4B.1.
- [20] Glick Y, Shamir Y, Aviel M, et al. 1.2 kW clad pumped Raman all-passive-fiber laser with brightness enhancement[J]. Optics Letters, 2018, 43(19): 4755-4758.
- [21] Zhang L, Dong J Y, Feng Y. High-power and high-order random Raman fiber lasers[J]. IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics, 2018, 24(3): 1400106.
- [22] Jiang H W, Zhang L, Feng Y. Silica-based fiber Raman laser at $>2.4 \mu\text{m}$ [J]. Optics Letters, 2015, 40(14): 3249-3252.
- [23] Bernier M, Fortin V, El-Amraoui M, et al. 3.77 μm fiber laser based on cascaded Raman gain in a chalcogenide glass fiber[J]. Optics Letters, 2014, 39(7): 2052-2055.
- [24] Fortin V, Bernier M, Faucher D, et al. 3.7 W fluoride glass Raman fiber laser operating at 2231 nm [J]. Optics Express, 2012, 20(17): 19412-19419.
- [25] Zhu G W, Geng L X, Zhu X S, et al. Towards ten-watt-level 3-5 μm Raman lasers using tellurite fiber [J]. Optics Express, 2015, 23(6): 7559-7573.
- [26] Ni C Q, Gao W Q, Chen X C, et al. Theoretical investigation on mid-infrared cascaded Raman fiber laser based on tellurite fiber [J]. Applied Optics, 2017, 56(33): 9171-9178.
- [27] Yao T F, Huang L J, Zhou P, et al. Power scaling on tellurite glass Raman fibre lasers for mid-infrared applications [J]. High Power Laser Science and Engineering, 2018, 6: e24.
- [28] Xu M R, Yu F, Knight J. Mid-infrared 1 W hollow-core fiber gas laser source[J]. Optics Letters, 2017, 42(20): 4055-4058.
- [29] Cui Y L, Huang W, Wang Z F, et al. 4.3 μm fiber

- laser in CO₂-filled hollow-core silica fibers [J]. *Optica*, 2019, 6(8): 951-954.
- [30] 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.
- [31] Aghbolagh F B A, Nampootheri V, Debord B, et al. Mid IR hollow core fiber gas laser emitting at 4.6 μm [J]. *Optics Letters*, 2019, 44(2): 383-386.
- [32] Wang Z F, Huang W, Li Z X, et al. Progress and prospects of fiber gas laser sources (I): Based on stimulated Raman scattering[J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2021, 48(4): 0401009.
王泽锋, 黄威, 李智贤, 等. 光纤气体激光光源研究进展及展望(I): 基于受激拉曼散射[J]. *中国激光*, 2021, 48(4): 0401009.
- [33] Tang Y X, Wright L G, Charan K, et al. Generation of intense 100 fs solitons tunable from 2 μm to 4.3 μm in fluoride fiber[J]. *Optica*, 2016, 3(9): 948-951.
- [34] Yao C F, Jia Z X, Li Z R, et al. High-power mid-infrared supercontinuum laser source using fluorotellurite fiber[J]. *Optica*, 2018, 5(10): 1264-1270.
- [35] Dudley J M, Taylor J R. Supercontinuum generation in optical fibers [M]. Cambridge: Cambridge University Press, 2009.
- [36] Toth L M, Quist A S, Boyd G E. Raman spectra of zirconium(IV) fluoride complex ions in fluoride melts and polycrystalline solids[J]. *The Journal of Physical Chemistry*, 1973, 77(11): 1384-1388.
- [37] Mori A. Tellurite-based fibers and their applications to optical communication networks[J]. *Journal of the Ceramic Society of Japan*, 2008, 116(1358): 1040-1051.
- [38] Aggarwal I D, Sanghera J S. Development and applications of chalcogenide glass optical fibers at NRL[J]. *Journal of Optoelectronics and Advanced Materials*, 2002, 4(3): 665-678.
- [39] Xia C N, Xu Z, Islam M N, et al. 10.5 W time-averaged power mid-IR supercontinuum generation extending beyond 4 μm with direct pulse pattern modulation[J]. *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics*, 2009, 15(2): 422-434.
- [40] O'Donnell M D, Richardson K, Stolen R, et al. Tellurite and fluorotellurite glasses for fiberoptic Raman amplifiers: glass characterization, optical properties, Raman gain, preliminary fiberization, and fiber characterization [J]. *Journal of the American Ceramic Society*, 2007, 90(5): 1448-1457.
- [41] Stuart B C, Feit M D, Herman S, et al. Optical ablation by high-power short-pulse lasers[J]. *Journal of the Optical Society of America B*, 1996, 13(2): 459-468.
- [42] Feng Y. Raman Fiber Lasers [M]. Switzerland: Springer, 2017.
- [43] Li Z R, Li N, Yao C F, et al. Tunable mid-infrared Raman soliton generation from 1.96 μm to 2.82 μm in an all-solid fluorotellurite fiber[J]. *AIP Advances*, 2018, 8(11): 115001.
- [44] Jackson S D, Anzueto-Sánchez G. Chalcogenide glass Raman fiber laser [J]. *Applied Physics Letters*, 2006, 88(22): 221106.
- [45] Bernier M, El-Amraoui M, Couillard J F, et al. Writing of Bragg gratings through the polymer jacket of low-loss As₂S₃ fibers using femtosecond pulses at 800 nm [J]. *Optics Letters*, 2012, 37(18): 3900-3902.
- [46] Bernier M, Fortin V, Caron N, et al. Mid-infrared chalcogenide glass Raman fiber laser [J]. *Optics Letters*, 2013, 38(2): 127-129.
- [47] Peng X F, Zhang P Q, Wang X S, et al. Modeling and simulation of a mid-IR 4.3 μm Raman laser in chalcogenide glass fibers[J]. *OSA Continuum*, 2019, 2(8): 2281-2292.
- [48] Fortin V, Bernier M, Carrier J, et al. Fluoride glass Raman fiber laser at 2185 nm [J]. *Optics Letters*, 2011, 36(21): 4152-4154.
- [49] Luo H Y, Li J F, Li J, et al. Numerical modeling and optimization of mid-infrared fluoride glass Raman fiber lasers pumped by Tm³⁺-doped fiber laser[J]. *IEEE Photonics Journal*, 2013, 5(2): 2700211.
- [50] Wang Y, Luo Z Q, Xiong F F, et al. Numerical optimization of 3-5 μm mid-infrared ZBLAN fiber Raman lasers[J]. *Laser & Optoelectronics Progress*, 2014, 51(6): 061405.
王莹, 罗正钱, 熊凤福, 等. 数值优化 3~5 μm 中红外 ZBLAN 光纤拉曼激光器的研究[J]. *激光与光电子学进展*, 2014, 51(6): 061405.
- [51] Liu L, Qin G S, Tian Q J, et al. Numerical investigation of mid-infrared Raman soliton source generation in endless single mode fluoride fibers[J]. *Journal of Applied Physics*, 2014, 115(16): 163102.
- [52] Duval S, Gauthier J C, Robichaud L R, et al. Watt-level fiber-based femtosecond laser source tunable from 2.8 μm to 3.6 μm [J]. *Optics Letters*, 2016, 41(22): 5294-5297.
- [53] Mori A, Masuda H, Shikano K, et al. Ultra-wide-band tellurite-based fiber Raman amplifier [J]. *Journal of Lightwave Technology*, 2003, 21(5): 1300-1306.
- [54] Qin G S, Liao M S, Suzuki T, et al. Widely tunable ring-cavity tellurite fiber Raman laser [J]. *Optics*

- Letters, 2008, 33(17): 2014-2016.
- [55] Liu L, Tian Q J, Liao M S, et al. All-optical control of group velocity dispersion in tellurite photonic crystal fibers [J]. Optics Letters, 2012, 37 (24): 5124-5126.
- [56] Koptev M Y, Anashkina E A, Andrianov A V, et al. Widely tunable mid-infrared fiber laser source based on soliton self-frequency shift in microstructured tellurite fiber [J]. Optics Letters, 2015, 40 (17): 4094-4097.
- [57] Yao C F, Zhao Z P, Jia Z X, et al. Mid-infrared dispersive waves generation in a birefringent fluorotellurite microstructured fiber [J]. Applied Physics Letters, 2016, 109(10): 101102.
- [58] Yao C F. Design and preparation of fluorotellurite glass fibers and their application in mid-infrared supercontinuum generation [D]. Changchun: Jilin University, 2018: 81-89.
姚传飞. 氟碲酸盐玻璃光纤的设计、制备及其在中红外超连续光源方面的应用 [D]. 长春: 吉林大学, 2018: 81-89.
- [59] Guo X H, Li Z R, Jiao Y D, et al. A shower of mid-infrared Raman solitons at designed wavelength of $\sim 3 \mu\text{m}$ from a tapered fluorotellurite fiber [J]. Laser Physics, 2021, 31(9): 095103.
- [60] Li Z R, Yao C F, Jia Z X, et al. Broadband supercontinuum generation from 600 nm to 5400 nm in a tapered fluorotellurite fiber pumped by a 210 nm femtosecond fiber laser [J]. Applied Physics Letters, 2019, 115(9): 091103.
- [61] Jia Z X, Yao C F, Li Z R, et al. Progress on novel high power mid-infrared fiber laser materials and supercontinuum laser [J]. Chinese Journal of Lasers, 2019, 46(5): 0508006.
贾志旭, 姚传飞, 李真睿, 等. 新型高功率中红外光纤激光材料与超连续谱激光研究进展 [J]. 中国激光, 2019, 46(5): 0508006.
- [62] Li Z R, Jia Z X, Yao C F, et al. 22.7 W mid-infrared supercontinuum generation in fluorotellurite fibers [J]. Optics Letters, 2020, 45(7): 1882-1885.

Progress on Mid-Infrared Raman Lasers Based on Special Glass Fibers

Jia Zhixu, Guo Xiaohui, Jia Yadong, Qin Weiping, Qin Guanshi*

*State Key Laboratory of Integrated Optoelectronics, College of Electronic Science and Engineering,
Jilin University, Changchun, Jilin 130012, China*

Abstract

Significance High power mid-infrared (MIR) fiber lasers have important applications in fundamental research, atmospheric communications, environmental monitoring, national defense & security, and so on. Raman fiber lasers and rare earth ions doped fiber lasers are two key technologies for MIR laser generation. Now, 3–4 μm fiber lasers have been demonstrated based on rare earth ions doped fluoride glass fibers. Whereas, due to the narrow and isolated emission bands of rare earth ions, the operational wavelengths of rare-earth-doped fiber lasers cannot cover all wavelengths in the MIR region. Moreover, the obtained output power decreases with the increase of operational wavelength due to the low emission efficiency and large quantum defects in the MIR region for rare earth ions. Raman fiber lasers are realized based on the stimulated Raman scattering (SRS) effects in optical fibers. SRS is an important nonlinear optical process in optical fibers. When the pump laser is launched into the fiber core, it would interact with the medium, and be scattered to Stokes light with a longer operational wavelength. The frequency difference between the pump and Stokes light is named as Raman shift. The generated Stokes light can serve as the pump light and cause the generation of next order Stokes light with a longer operational wavelength, which means that cascaded operation can be achieved for Raman fiber lasers. That is to say, if there is pumping light with a suitable wavelength and an infrared glass fiber with a low loss and high laser damage threshold, fiber lasers operating at any wavelength within the transmission window of the glass matrix can be achieved based on the Raman shift and cascaded Raman operation in principle, which is inaccessible for rare earth ion doped fiber lasers. Since then, to explore glass fibers with wide MIR transmission windows, good stabilities, high laser damage thresholds, big Raman shifts, and large Raman gain coefficients has been of great significant for the development of high power MIR fiber lasers.

Progress By using silica fibers as Raman gain media, the output powers of $\sim 1 \mu\text{m}$ Raman fiber lasers have exceeded 1 kW, and Raman fiber lasers with a tunable wavelength ranging from 1 μm to 2 μm have also been

demonstrated. Whereas, the longest operational wavelength of the Raman fiber lasers based on traditional silica fibers is limited within $2.5 \mu\text{m}$ due to the high background loss in the MIR region. Currently, researches on MIR Raman fiber lasers are based on tellurite, fluoride or chalcogenide glass fibers which have relative low transmission losses in the MIR region. Chalcogenide glass has a relative large Raman gain coefficient. By using As_2S_3 glass fibers as Raman gain media, researchers demonstrated second-order cascaded Raman lasing at $3.77 \mu\text{m}$ with an average output power of 9 mW (Fig. 9). Compared with chalcogenide glasses, fluoride glasses have a high laser damage threshold. By using fluoride glass fibers as Raman gain media, researchers reported a 3.7 W Raman fiber laser at 2231 nm (Fig. 13). Compared with chalcogenide and fluoride glasses, tellurite glasses have a large Raman shift. By using tellurite glass fibers as Raman gain media, 3–5 μm MIR Raman fiber lasers with a tens of watts output power could be achieved in principle (Fig. 16). Recently, as the development of fiber fabrication technologies, hollow core fibers with low MIR transmission losses can be obtained. By using CO_2 filled hollow core fibers as Raman gain media, researchers demonstrated a 4.3 μm Raman laser with an output power of 82 mW. Besides, a widely tunable Raman soliton pulse could be obtained by employing the soliton self-frequency shift (based on intrapulse Raman scattering effect) in optical fibers. Researchers demonstrated 2–4.3 μm tunable Raman soliton generation in fluoride fibers (Fig. 14). Very recently, the authors have developed fluorotellurite glass fibers with a wide transmission window (0.4–6 μm), good stability, high laser damage threshold, big Raman shift ($\sim 780 \text{ cm}^{-1}$), and large Raman gain coefficient ($1.28 \times 10^{-12} \text{ m/W@}2 \mu\text{m}$), and based on them, the generation of 1.96–2.82 μm tunable Raman solitons (Fig. 21) and “a shower of Raman solitons” at a preset wavelength of $\sim 3 \mu\text{m}$ are obtained (Fig. 24), which preliminarily verifies the potential of fluorotellurite glass fibers for constructing mid-infrared Raman fiber lasers.

Conclusion and Prospect Raman fiber lasing is an efficient approach for the generation of high power MIR fiber lasers. Currently, by using tellurite, fluoride or chalcogenide glass fibers as the Raman gain media, the 3.77 μm second order cascaded Raman fiber laser and 2–4.3 μm tunable Raman soliton fiber laser have been developed. However, limited by the characteristics of infrared glass and high quality fiber & device fabrication technologies, the research on MIR Raman fiber lasers is still in the development stage, and the output power is quite low in the order of watts. Very recently, the authors have developed fluorotellurite glass fibers with good stabilities and high laser damage thresholds, and preliminarily verified their potential for constructing high power MIR Raman fiber lasers. We believe that tunable MIR Raman soliton lasers covering the whole 2–5 μm region could be obtained by optimizing the parameters of fluorotellurite glass fibers and pump lasers, and hundred-watt-level high power MIR Raman fiber lasers would be achieved by improving the quality of fluorotellurite fibers and with the development of high quality MIR fiber devices (e.g. fiber gratings) in the future.

Key words lasers; Raman lasers; infrared and far-infrared lasers; fiber lasers; fiber materials