

超大模场硫系玻璃光子晶体光纤研究进展

冯宪^{*}, 杨志勇^{**}, 施进丹^{***}

江苏师范大学物理与电子工程学院, 江苏省先进激光材料与器件重点实验室, 江苏 徐州 221116

摘要 近年来迅速发展的中红外高功率激光技术迫切需要具有输出光束质量高、质量轻、结构紧凑等特性的中红外光纤介质,用于实现激光产生、传输等。在中红外玻璃中,硫系玻璃具有最宽的透光范围;同时,硫系玻璃又具有最高的折射率和非线性折射率系数,因此它们被认为是理想的产生和传输中红外激光的光纤基质。然而,硫系玻璃网络结构由弱化学键组成,使得硫系玻璃光纤具有较低的激光损伤阈值,这与高功率激光应用需求相矛盾。在不牺牲光纤输出光束质量的前提下,大模场光子晶体光纤技术是优选的实现功率提升的技术方案。本文首先介绍了中红外激光的高功率应用需求和中红外光纤材料低激光损伤阈值之间存在的矛盾,继而对面向中红外高功率激光应用的超大模场硫系玻璃光子晶体光纤的发展进行了综述,详细描述了超大模场硫系玻璃光子晶体光纤设计、制备、材料选择、光纤性能表征等过程,并对其应用前景和存在的技术瓶颈进行了讨论和展望。结果表明,超大模场硫系玻璃光子晶体光纤有望被应用于百瓦级中红外高功率激光应用场景中。

关键词 激光光学; 光子晶体光纤; 红外光纤; 超连续谱产生; 激光传输

中图分类号 O436

文献标志码 A

doi: 10.3788/CJL202249.0101006

1 引言

随着信息容量的飞速扩展,以电磁波为信息载体的现代信息技术已经发展成为足以影响和改变一个国家的经济、科技、安全等重要政策的核心技术之一。覆盖更宽谱域、具有更高能量的电磁波频谱技术是各国提高国际竞争力的重点发展方向之一。光波段电磁波频谱技术的发展呈现出从可见光向近红外乃至更长波长延展的趋势。自古以来可见光波段都是常规的远距离通信波段,譬如古代的烽火和现在仍在航海舰船上使用的旗语和灯语等。在过去的半个世纪,以 $1.55\ \mu\text{m}$ 光纤通信为核心的近红外激光技术成就了互联网技术的蓬勃发展;而 $2\sim 20\ \mu\text{m}$ 波段(即中红外波段)已经成为当前激光通信技术研究的重点波段。

中红外波段覆盖了 $3\sim 5\ \mu\text{m}$ 和 $8\sim 12\ \mu\text{m}$ 两个大气高度透明窗口,而 $3\sim 5\ \mu\text{m}$ 波段在实际应用中更为重要,这是因为:1) $3\sim 5\ \mu\text{m}$ 激光受雾、烟和尘

因素的干扰较小,能够实现几千米到几十千米的远距离传输;2)根据维恩位移定律, $3\sim 5\ \mu\text{m}$ 对应着 $300\sim 700\ ^\circ\text{C}$ 温度区间的黑体辐射峰值波长,这与普通发动机的燃烧温度相近,是红外搜索和跟踪探测系统的主要工作波段,采用同一波段的百瓦级大功率激光进行定向压制式红外干扰是反制红外跟踪的最直接有效的手段。此外,大量分子的指纹式基频振动吸收谱线落在中红外波段。中红外波段的这些特点决定了以 $3\sim 5\ \mu\text{m}$ 为重点波段的中红外激光技术在大气遥感、星地通信、医疗健康、环保监控、国防安全等领域有着巨大的应用价值^[1-5]。在各国大力发展多波段或全波段电磁波频谱技术的大背景下,频率覆盖范围广、输出功率大的中红外激光技术将成为光信息技术发展的重点和热点。

光纤具有输出光束质量高、单位长度成本低、柔性可弯曲、结构紧凑、质量轻、便携性高等优点,因此低损耗石英光纤技术在近红外波段的千瓦至万瓦级的高功率光纤激光技术的发展过程中起到了关键性

收稿日期: 2021-09-01; 修回日期: 2021-10-10; 录用日期: 2021-10-18

基金项目: 国家自然科学基金(62175096)、江苏省双创团队(中红外光纤激光核心技术,高校创新类 2020—2023)

通信作者: *xianfeng@jsnu.edu.cn; **zhiyongyang@jsnu.edu.cn; ***shi.jindan@jsnu.edu.cn

作用。当前迅速发展的中红外激光技术也呈现出与光纤技术紧密结合的趋势,譬如:中红外光纤激光器、中红外光纤超连续谱光源都必须使用光纤介质;在 $3\ \mu\text{m}$ 以上波段,基于半导体材料技术的量子级联激光器(quantum cascaded laser, QCL)已经放弃了笨拙的自由空间输出方式,而采用更为灵活的光纤耦合输出技术。中红外高功率激光技术的快速发展迫切需要与之发展水平相匹配的中红外光纤技术迅速跟进。

在中红外玻璃中,基于硫族元素(硫、硒、碲)形成的硫系玻璃(chalcogenide glass, ChG)是能够覆盖中红外 $2\ \mu\text{m}$ 以上最宽波段的光纤材料。由于材料的长波透过能力和激光损伤阈值都与其基质玻璃网络结构的化学键强度直接相关,由弱化学键构成的 ChG 在具有中红外波段高度透明特性的同时,其激光损伤阈值比传统的石英玻璃低近两个数量级。因此,要满足中红外高功率激光应用的需求,需要克服 ChG 较低的激光损伤阈值这一弱点对功率提升的限制。本文针对中红外 ChG 的低激光损伤阈值和高功率激光应用需求这一对矛盾,综述了面向中红外 $3\sim 5\ \mu\text{m}$ 百瓦级高功率激光应用的超大模场(ultra-large mode area, ULMA) ChG 光子晶体光纤(photonic crystal fiber, PCF)的研究进展。

2 面向高功率激光应用的 ULMA ChG PCF

硫化物玻璃、硒化物玻璃和碲化物玻璃的高透过率窗口分别为 $1\sim 8\ \mu\text{m}$ 、 $2\sim 12\ \mu\text{m}$ 和 $4\sim 18\ \mu\text{m}$ 。此外,ChG 的三阶克尔非线性折射率 n_2 在 $10^{-18}\sim 10^{-17}\ \text{m}^2/\text{W}$ 量级,是所有光学玻璃折射率的最大值^[6],比石英玻璃的折射率高 $2\sim 3$ 个数量级,在 ChG 光纤中产生相同的非线性相位移动所需的激光峰值功率要比在相同芯径的石英光纤低 $2\sim 3$ 个数量级。这些材料特性带来了 ChG 光纤在中红外波段的 3 个重要应用:高功率中红外激光传输^[7-12]、中红外非线性频率产生(如四波混频、受激拉曼散射、受激布里渊散射、中红外超连续谱产生等)^[13-19] 和中红外光纤束热成像^[20-21]。前两种应用都明确要求光纤在实现近单模激光输出的同时,能够承受和输出较高功率的激光。

2.1 中红外高功率连续激光对光纤的要求

首先,中红外高功率激光器如 $2\ \mu\text{m}$ 掺铊石英光纤激光器、 $5\ \mu\text{m}$ 一氧化碳激光器、 $9\sim 10\ \mu\text{m}$ 二氧

化碳激光器等,都能够实现千瓦或万瓦量级的高功率连续激光输出。其次,过渡金属离子 Cr^{2+} 掺杂的硫化锌和硒化锌晶体固态激光器的中红外连续激光输出功率已经达到了 $100\ \text{W}$ 以上,可调谐波长输出范围能够覆盖 $2\sim 4\ \mu\text{m}$ 。最后,QCL 激光器被视为最有前途的小型化中红外激光光源,已有报道的激光输出波长已经覆盖 $4\ \mu\text{m}$ 以上的所有中红外波长,而近单模、连续 QCL 激光输出功率也超过 $8\ \text{W}$ ^[22];在此基础上,2014 年美国开始立项研究 QCL 阵列合束技术来实现中红外百瓦到千瓦量级的近单模、高功率连续激光输出^[23-24]。因此,从整个中红外激光器的发展趋势来看,覆盖 $3\sim 5\ \mu\text{m}$ 波段的百瓦到千瓦级高功率中红外激光技术的实现指日可待,这迫切需要开发出一种新型中红外 ChG 光纤,在满足高光束质量输出的同时,能够承受和传输百瓦级高功率激光。

2.2 中红外高功率超快脉冲激光对光纤的要求

以 ChG 光纤产生中红外超连续谱为例,光纤超连续谱是飞秒或皮秒超快激光脉冲在色散调节非线性光纤传输过程中,在自相位调制、四波混频、受激拉曼散射等非线性效应共同作用下产生的脉冲展宽效应^[25]。由于 ChG 光纤具有极高的非线性系数和优良的中红外激光透过性能,当超快脉冲抽运波长位于光纤近零色散点时,光纤中产生的中红外超连续谱的光谱宽度可以达到 $10\ \mu\text{m}$ 以上^[15-19,26-27]。对于 ChG 光纤的中红外超连续谱光源的研究主要集中在扩展带宽、提高输出功率和光谱功率密度、提高光谱性能(如偏振、相干度)等方面。近年发展起来的级联抽运技术,即通过 $1.5\sim 2\ \mu\text{m}$ 超快脉冲抽运依次级联的几段中红外光纤(依次可以是氟化物光纤、硫化物光纤、硒化物光纤等),结合 $1.5\sim 2\ \mu\text{m}$ 高功率光纤超快脉冲抽运光源和普通芯径的中红外非线性光纤的色散特性,已经实现了较高功率的宽谱中红外超连续谱输出。但是,由于采用的单模 ChG 光纤的芯径仅为 $10\ \mu\text{m}$ 左右,超连续谱输出功率受限于材料的激光损伤阈值,其落在 $3\sim 5\ \mu\text{m}$ 有用区间内的净平均功率尚不超过 $1\ \text{W}$ ^[17,27]。激光遥感、光电对抗等应用要求中红外 $3\sim 5\ \mu\text{m}$ 光纤超连续谱光源具有平坦的光谱谱线和高光谱功率密度。具体地,要求 $3\sim 5\ \mu\text{m}$ 有用波段的光谱功率密度达到 $10\sim 100\ \text{mW}/\text{nm}$ 水平,即光谱平均功率为 $20\sim 200\ \text{W}$ 。综合考虑抽运耦合效率、光纤损耗、超连续谱产生的光-光转换效率等因素时,同样要求近单模 ChG 光纤能够承受百瓦级平均功率的中红外

超快脉冲激光抽运。

2.3 ChG 材料激光损伤阈值

前文指出中红外 3~5 μm 高功率激光技术需要单模 ChG 光纤在光谱上能够覆盖 3~5 μm , 同时在功率上能够承受(包括输入、传输和输出)百瓦级的高功率激光。但是, 这一需求与 ChG 光纤激光损伤阈值较低的材料特性相矛盾。

表 1 给出了 ChG 光纤在不同波长的中红外连续激光入射时的最大承受功率^[7,10,12]。图 1 总结了 ChG 光纤在中红外 2~10.6 μm 连续激光入射时的损伤阈值^[7-12]。可以看到: 1) 硫化物玻璃(硫

化砷玻璃、锗-砷-硫玻璃) 光纤在 2 μm 和 2.5 μm 处能承受 2~12 MW/cm^2 的连续激光功率密度, 对于 10 μm 模场直径(mode field diameter, MFD) 的单模光纤, 最大承受功率约为 10 W; 在 4 μm 和 5.4 μm 处硫化物玻璃能承受 100~250 kW/cm^2 的连续激光功率密度, 对于 10 μm MFD 的单模光纤, 最大的承受功率约为 0.2 W。2) 含碲化合物玻璃(锗-砷-碲-碲玻璃) 光纤在 10.6 μm 处能承受最高约 50 kW/cm^2 的连续激光功率密度, 对于 10 μm MFD 的单模光纤, 最大承受功率约为 40 mW。

表 1 报道的 ChG 光纤承受中红外连续激光的最大功率

Table 1 Reported maximum resisted mid-IR power of ChG fibers

Laser wavelength / μm	Fiber host	Core diameter / μm	Maximum resisted power / W	Fiber type	Ref.
2	As ₂ S ₃	12	12	Few-moded fiber excited by LP ₀₁ mode	[10]
5.4	As ₂ S ₃	1000	460	Multimode fiber	[7]
10.6	Ge-As-Se-Te	400	6.16	Multimode fiber	[12]

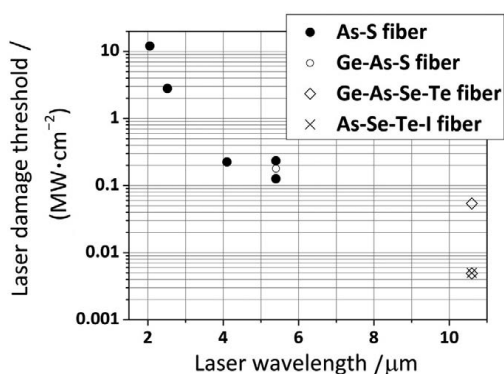


图 1 已报道的 ChG 光纤在连续激光条件下最高激光入射损伤阈值总结^[7-12]

Fig. 1 Summary of reported maximum incident CW laser damage threshold of ChG fibers^[7-12]

图 2 对比了用于 3~5 μm 波段的氟化物、氟碲酸盐和 ChG 光纤在不同脉冲宽度(从连续到百飞秒脉宽)的激光照射下能够承受的最高峰值功率密度(横坐标最右侧为连续激光), 并与石英光纤进行了对比^[11,19,28-36]。表 2 列出了连续激光条件下石英、氟化物、氟碲酸盐和 ChG 光纤的损伤阈值^[11,28,31,34]。

从图 2 和表 2 可以看到:

1) 光纤材料的激光损伤阈值按石英光纤、氟碲酸盐光纤、氟化物光纤、ChG 光纤的顺序依次下降, 这与光纤基质玻璃组成中的化学键强度直接相关。在连续激光照射条件下, 石英光纤的激光损伤阈值

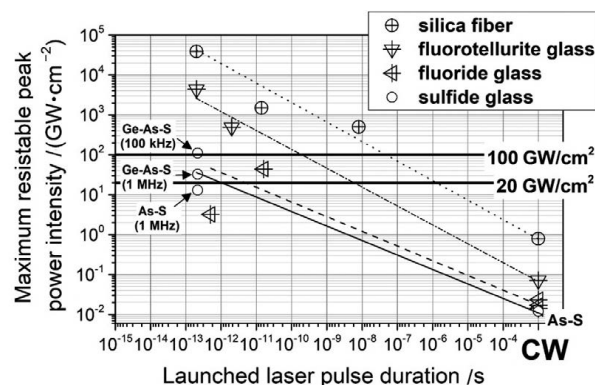


图 2 石英、氟化物、氟碲酸盐和 ChG 光纤在不同脉冲宽度的激光照射下能够承受的最高峰值功率密度比较^[28-36]

Fig. 2 Comparison of maximum resistable peak power density of silica, fluoride, fluorotellurite, and ChG fibers under irradiation of pulsed laser with various pulse durations^[28-36]

是最弱的硫化物玻璃光纤的近 50 倍。

2) 随着入射激光脉冲宽度变短, 光纤能够承受的最高峰值功率密度呈指数式上升, 这是因为玻璃与连续激光相互作用时, 光纤内部产生的热效应导致光纤受到损伤, 而在使用超快脉冲激光的情况下, 激光脉冲和材料相互作用产生的热效应变得不显著, 材料能在较高的峰值功率下正常工作。具体而言, 硫化物光纤在入射激光的脉冲宽度为亚皮秒(或

以下)量级时,其激光损伤峰值功率阈值可以达到 20 GW/cm^2 以上;而在连续激光条件下,ChG 光纤材料的激光损伤阈值在 $10 \sim 20 \text{ MW/cm}^2$ 的水平。

表 2 连续激光条件下石英、氟化物、氟碲酸盐和 ChG 光纤的损伤阈值

Table 2 Damage threshold of various glass fibers, including silica, fluoride, fluorotellurite, and ChG fibers under CW laser irradiation

Fiber host material	Laser damage threshold / ($\text{GW} \cdot \text{cm}^{-2}$)	Ref.
Silica (SiO_2)	~ 0.8	[28]
Fluorotellurite ($\text{TeO}_2\text{-BaF}_2\text{-Y}_2\text{O}_3$)	~ 0.07	[34]
Fluoride (ZrF_4 -based)	~ 0.02	[31]
Chalcogenide (Ge-As-S)	$0.01\text{-}0.02$	[11]

3) 通过组成调控来强化玻璃网络结构和构成的化学键,在相同激光照射条件下,中红外光纤材料能够承受的激光功率密度显著提高。譬如在相同参数的飞秒激光照射条件下,在常用的硫化砷(As-S)玻璃中引入强化学键元素锗形成锗-砷-硫(Ge-As-S)玻璃,此时锗-砷-硫玻璃的激光损伤阈值比硫化砷玻璃要高 2~3 倍。同时,降低超快脉冲激光的重复频率也有利于大幅提高 ChG 材料的峰值功率损伤阈值^[19,36]。

4) 与硫化物玻璃相比,硒化物或碲化物玻璃的中红外低损耗波段可以向更长波长方向扩展,但由于硒和碲元素的相对原子质量大于硫元素,且原子半径更大,会在玻璃网络结构中引入更弱的化学键,从而降低光纤的激光损伤阈值。

在中红外连续激光入射条件下,ChG 光纤的端面损伤表现为热损伤^[7]。由于材料自身特性、杂质、缺陷等,玻璃会吸收一定的激光能量,而吸收的激光能量被转换成热,从而导致光纤入射端温度上升,并沿光纤形成温度梯度;同时,由于材料存在热光系数 dn/dT ,光纤横截面径向温度梯度会导致热透镜效应,促进了纤芯内部的温度升高;由弱化学键构成的 ChG 的玻璃化转变温度(T_g)较低,常用的硫化砷玻璃和锗-砷-硫玻璃的 T_g 只有 $200 \sim 300 \text{ }^\circ\text{C}$,当纤芯温度升高到玻璃化转变温度附近时,会导致入射端面损伤。ChG 网络结构由硫、硒、碲等元素的弱化学键构成,因此 ChG 的激光损伤阈值比氧化物玻璃低几个数量级,这大大限制了 ChG 光纤在中红外高功率激光传输中的应用。对于传统结构的 ChG 光

纤,只能采用几百 μm 尺寸的大芯径多模光纤的办法,通过牺牲光束质量来提高能够承受的激光功率^[7]。

当超快脉冲激光入射到 ChG 光纤时(譬如在产生中红外超连续谱时),由于飞秒激光脉冲热效应弱,热损伤不容易发生;但是飞秒激光的峰值功率高,由 ChG 的高非线性折射率 n_2 导致的自聚焦等非线性效应显著,从而导致光纤入射端损伤。超连续谱的产生效率和谱宽与光纤色散和输出模式密切相关,需要使用单模或近单模光纤作为非线性介质。大芯径多模光纤由于存在过多的模式,并且其高阶模的色散特性非常复杂,不是产生高效、宽幅超连续谱的理想光纤介质。目前已经通过级联抽运技术在 ChG 光纤中产生了最高输出功率为 1.39 W 的宽幅中红外超连续谱,采用的 ChG 光纤是 $10 \mu\text{m}$ 左右芯径的近单模光纤。根据报道,硫化砷玻璃光纤在 $2 \sim 5 \mu\text{m}$ 飞秒超连续谱入射情况下,最大承受平均功率密度约为 2.7 MW/cm^2 ^[17],即 $10 \mu\text{m}$ 芯径硫化砷玻璃光纤能够承受超快飞秒抽运的平均功率约为 2 W 。而硒化砷玻璃光纤在 $3.6 \mu\text{m}$ 飞秒孤子激光入射情况下,最大承受平均功率密度约为 0.5 MW/cm^2 ^[27],即 $10 \mu\text{m}$ 芯径硒化砷光纤能够承受超快飞秒抽运的平均功率约为 0.4 W 。

中红外高功率连续激光传输和中红外高功率超连续谱产生这两个应用都需要 ChG 光纤在 $3 \sim 5 \mu\text{m}$ 波段能够承受近百瓦的激光功率(对超快脉冲激光为平均功率)。针对这个需求,理论上存在两个解决方案:1)通过改变光纤材料,把材料的激光损伤阈值提高两个数量级;2)把普通 $10 \mu\text{m}$ 芯径的单模光纤的 MFD 提高一个量级以上。

ChG 光纤的激光损伤阈值可以通过优化玻璃化学组成来提高,但其效果是有限,且有代价的。光学玻璃的中红外透过特性可以用简化的双振子弹簧模型 $\bar{\nu} = \frac{1}{2\pi} \cdot \sqrt{k/\mu}$ [其中 $\bar{\nu}$ 为谐振频率; k 为弹簧的弹性常数,表示构成玻璃结构的化学键强度; $\mu = (m_1 \cdot m_2)/(m_1 + m_2)$ 为约化质量, m_1 和 m_2 为弹簧两端振子质量(振子表示构成玻璃结构的原子)] 来解释。当玻璃材料由较重元素或(和)较弱化学键构成时,由多声子吸收决定的长波截止边发生红移,即长波透过率提高。由此可以看到,ChG 优良的中红外透过性能和较低的激光损伤阈值都取决于 ChG 结构的弱化学键。从图 1 和图 2 的总结可以看到:1)石英玻璃、氟碲酸盐玻璃和氟化物玻璃由于

构成其玻璃网络结构的化学键强度大,其激光损伤阈值明显高于硫化物玻璃材料,但这也导致了其长波截止边分别受限于 $\sim 2.2 \mu\text{m}$ 、 $\sim 3.5 \mu\text{m}$ 和 $\sim 4.5 \mu\text{m}$ (对应的光纤材料损耗为 dB/m 量级),只有硫系玻璃光纤能够在整个 $3\sim 5 \mu\text{m}$ 波段中(或更宽的中红外波长范围)实现低损耗($< 1 \text{ dB/m}$)传输;2)通过优化 ChG 光纤的玻璃组成,可以将材料的激光损伤阈值提高 $2\sim 3$ 倍,但是在数量级上大幅度提高 ChG 光纤材料的损伤阈值几乎是不可能的,因为这势必在玻璃中引入较强的化学键,从而牺牲其中红外长波方向的透过性能。

综上,ULMA 光纤技术是在保证近单模输出的条件下提高 ChG 光纤对高功率中红外激光承受能力的唯一有效手段。在相同的激光功率密度下,把单模光纤的 MFD 从 $10 \mu\text{m}$ 提高到 $100 \mu\text{m}$ 以上,光纤承受激光功率的能力就可提高 2 个数量级。

2.4 ULMA PCF 技术

大模场(large mode area, LMA)光纤技术在近红外高功率石英玻璃光纤激光器中已经取得了巨大的成功。目前大模场石英光纤的单纤连续激光输出功率达到了 10^4 W 以上^[37],而单纤飞秒激光输出峰值功率更是达到了 10^9 W 以上^[38]。

大模场光纤技术的关键在于在增加基模 LP_{01} 的模场面积的同时,要相应地减小光纤的数值孔径 (NA),避免纤芯支持高阶模的运行。简单地讲,当基模 LP_{01} 的 MFD 从 $10 \mu\text{m}$ 增大到 $100 \mu\text{m}$ 时,其数值孔径相应地减小至原来的 $1/10$,即从普通光纤的 ~ 0.15 下降到超低水平的 0.015 ,才能使得光纤保持单模输出,这要求纤芯和包层的折射率差从 10^{-2} 量级下降到 10^{-4} 量级。在传统气相沉积法制备石英光纤预制棒的工艺中,通过调控纤芯和包层化学组成的方法可以精确地把纤芯和包层的折射率差控制在 $10^{-2}\sim 10^{-3}$ 之间,因此目前利用化学方法能够制备的大模场单模光纤的纤芯尺寸上限约为 $40 \mu\text{m}$ (对应的数值孔径下限为 0.06)。

当制备 MFD 超过 $50 \mu\text{m}$ 的 ULMA 单模光纤时,要求将纤芯和包层的折射率差精确控制在 10^{-4} (或以下)的水平,这超出了化学方法能够实现的极限,只有通过光波长尺度上调控光纤纤芯和包层微结构参数的 PCF 技术^[39]才能实现如此低的纤芯-包层折射率差。基于折射率导光机制的 PCF 在本质上是多模光纤,可以通过调节光纤包层的光子晶体微结构参数,增加其基模 LP_{01} 和最低高阶模 LP_{11} 的泄漏损耗差,选择性地衰减高阶模而保留损

耗低的基模,从而制备出具有 ULMA 的有效单模光纤。

目前报道的稀土掺杂单模有源石英 PCF 和单模无源石英 PCF 的最大 MFD 分别为 $135 \mu\text{m}$ ^[40]和 $205 \mu\text{m}$ ^[41]。与普通大模场石英光纤相比, $100 \mu\text{m}$ 以上的近单模 ULMA 棒状 PCF 对高功率、高能量激光的承受能力显著提升。例如,目前在基于 $100 \mu\text{m}$ 以上 MFD 的 ULMA 有源石英 PCF 的激光光源中已经实现了脉冲能量在毫焦耳量级、峰值功率在 10^9 W 以上的飞秒脉冲输出^[42]。

可以预期,把 ULMA PCF 技术应用到激光损伤阈值较低的中红外 ChG 光纤中,把目前普遍采用 $10 \mu\text{m}$ 左右的单模光纤 MFD 提升到 $100\sim 200 \mu\text{m}$ (即把模场面积扩大 $100\sim 400$ 倍),就可能使 ChG 光纤满足承受百瓦级高功率、输出近单模的性能要求。

3 ULMA ChG PCF

法国雷恩第一大学、美国海军实验室、英国诺丁汉大学、宁波大学、中国科学院西安光学精密机械研究所、江苏师范大学等国内外研究单位都对 ChG 光纤进行了较长时间的研究,工作内容主要集中在相对较小芯径的 ChG 光纤设计制备、中红外波段传输特性、中红外超连续谱产生等方面。MFD 超过 $50 \mu\text{m}$ 的 ULMA ChG PCF 的工作在国内外都鲜有报道。

2011 年法国雷恩第一大学报道了用于中红外 $3\sim 12 \mu\text{m}$ 的 ChG(As-Se-Te 基质)单模 PCF 的制备工作,首次把单模 ChG 光纤的 MFD 提高到 $40 \mu\text{m}$ ^[43]。2013 年宁波大学报道了 ChG(Ge-Sb-Se 基质)单模 ULMA PCF 的仿真工作,在 $10.6 \mu\text{m}$ 波长处计算得到的基模模场面积为 $13333 \mu\text{m}^2$ (MFD 为 $130 \mu\text{m}$)^[44]。

2019 年本课题组报道了迄今模场面积最大的 ChG 单模 PCF 的设计和制备工作^[45]。所报道的全实心 PCF 由高折射率的 Ge-As-Se 玻璃和低折射率的 Ge-As-S 玻璃组成;光纤在 $4 \mu\text{m}$ 波长处的模场面积达到了 $5200 \mu\text{m}^2$ (对应的 MFD 为 $80 \mu\text{m}$);由于 ChG 的高折射率和光纤在中红外波段的较低损耗,在平均功率为 26 mW 的 $4 \mu\text{m}$ 飞秒激光抽运下,在 35 cm 长的光纤中产生了波段为 $3.5\sim 7.5 \mu\text{m}$ 、平均功率为 3.1 mW 的中红外超连续谱;如果把 $200 \mu\text{m}$ 的 ULMA PCF 技术应用到级联抽运使用的每一级光纤中,在近百瓦平均功率的超快飞秒激光抽运条件下,最后一级硒化物光纤能够承

受百瓦级以上的高功率抽运,并实现 ~ 40 W 平均功率的 $2\sim 12\ \mu\text{m}$ 全光纤超连续谱输出。为了解决单模 ULMA PCF 弯曲损耗高、使用时光纤需保持笔直状态的技术难题,本课题组于 2020 年继续报道了迄今模场面积最大的 ChG 少模 PCF 的设计和制备工作。全实心 PCF 同样由高折射率的锗-砷-硒玻璃和低折射率的锗-砷-硫玻璃构成;在 $2\ \mu\text{m}$ 处,光纤基模 LP_{01} 的模场面积达到 $10400\ \mu\text{m}^2$ (对应的 MFD 为 $115\ \mu\text{m}$), LP_{11} 模式的模场面积达到 $11300\ \mu\text{m}^2$; 该少模 ULMA PCF 表现出较低的弯曲损耗和较高的激光损伤功率水平^[46]。本文下面具体对这两项工作的实验细节进行阐述。

3.1 全实心 ULMA ChG PCF 制备过程

空气中较多微量气体在 $3\sim 5\ \mu\text{m}$ 波段出现特征吸收(如二氧化碳气体在 $4.2\ \mu\text{m}$ 的吸收等),且其吸收截面较大,因此选用全实心结构的 ULMA ChG PCF,以避免常见 PCF 的多孔微结构中填充的气体吸收增加光纤在中红外波段的传输损耗。

采用本课题组研究较为成熟的热稳定性高的 $\text{Ge}_{12}\text{As}_{24}\text{Se}_{64}$ 和 $\text{Ge}_{10}\text{As}_{24}\text{S}_{66}$ 玻璃分别作为光纤的高折射率背景材料和低折射率微结构填充材料。背景材料和微结构填充材料存在足够大的折射率差,可以制备出光学性能与多孔结构 PCF 完全相同的低损耗全实心 ULMA PCF^[47]。

首先,利用热挤压法制备光纤预制棒所需的玻璃棒、管。图 3(a)~(c)所示分别为前期通过挤压法制备的锗-砷-硫玻璃圆柱棒、锗-砷-硒玻璃圆管和锗-砷-硒玻璃内正六边形管,用作纤芯部分的锗-砷-硒圆柱棒则通过在低羟基石英管内熔制玻璃直接获得。然后,使用棒管法制备微结构 PCF 预制棒所需的微结构实心“毛细管”,见图 3(d),即将图 3(a)所示的低折射率玻璃棒塞入图 3(b)所示的高折射率玻璃圆管,再通过拉丝塔加热伸长功能,制备出米级长度的毫米级直径的实心“毛细管”。最后,通过堆积法将实心“毛细管”堆积在图 3(c)所示的高折射率玻璃内正六边形管中,构成微结构 PCF 预制棒,见图 3(e)。图 3(f)为全实心 ChG PCF 拉制示意图,上述制备的预制棒被置于通有高纯稀有气体的管式炉内,加热至拉丝温度,通过控制预制棒的送棒速度和拉丝速度的匹配,拉制出 ULMA ChG PCF。

3.2 单模 ULMA ChG PCF

图 4(a)、(b)所示分别为制备的背景材料 $\text{Ge}_{12}\text{As}_{24}\text{Se}_{64}$ 玻璃和填充材料 $\text{Ge}_{10}\text{As}_{24}\text{S}_{66}$ 玻璃的红外透过光谱和折射率曲线。可以看到,它们在

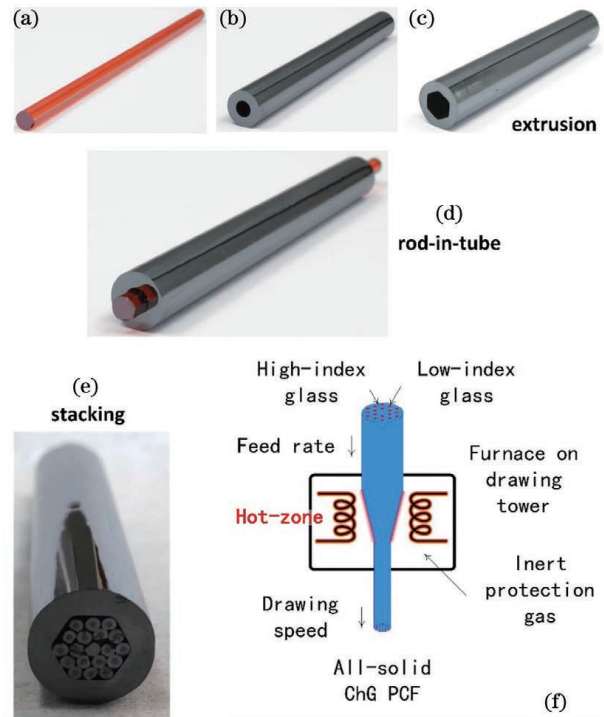


图 3 ULMA ChG PCF 制备流程。(a)~(c)热挤压法制备的用于制备 PCF 的 ChG 棒、管;(d)由低折射率棒和高折射率管组成的预制棒;(e)利用堆积法制备的 ChG PCF 预制棒;(f)全实心 ChG PCF 拉制示意图

Fig. 3 Fabrication flow of ULMA ChG PCF. (a)~(c) Extruded chalcogenide glass rod and tubes for PCF fabrication; (d) preform composed by low-index rod and high-index tube using rod-in-tube method; (e) stacked ChG preform for ULMA PCF; (f) schematic of drawing all-solid ChG PCF

$2\sim 8\ \mu\text{m}$ 波段都具有较平坦的透过率曲线,意味着它们在 $3\sim 5\ \mu\text{m}$ 波段内具有较低的材料损耗。

ULMA ChG PCF 的设计采用常见的最紧密三角形堆积结构,见图 4(c)。理论上,“无限单模”PCF 通过调节微结构参数实现有效单模运行完全是一个几何结构的问题,即当周期性微结构尺寸参数 $d/\Lambda \leq 0.45$ 时(d 为低折射率微孔直径, Λ 为相邻微孔中心距离),其相邻孔之间的高折射率玻璃部分的尺寸远小于纤芯能够支持的基模 LP_{01} 模场尺寸[图 4(d)],而约等于最低高阶模 LP_{11} 一瓣的模场尺寸[图 4(e)],这样基模 LP_{01} 的泄漏损耗很小,可忽略不计,而高阶模 LP_{11} 的泄漏损耗因为足够大而被衰减掉^[39]。

由于 ULMA PCF 的芯径远远大于光波长(为光波长的 $10\sim 100$ 倍),为使光纤的外径不至于过大而失去可弯曲能力,本课题组考察了光纤中的低折射率微结构圈数仅为 1 圈和 2 圈的情形。图 4(f)和

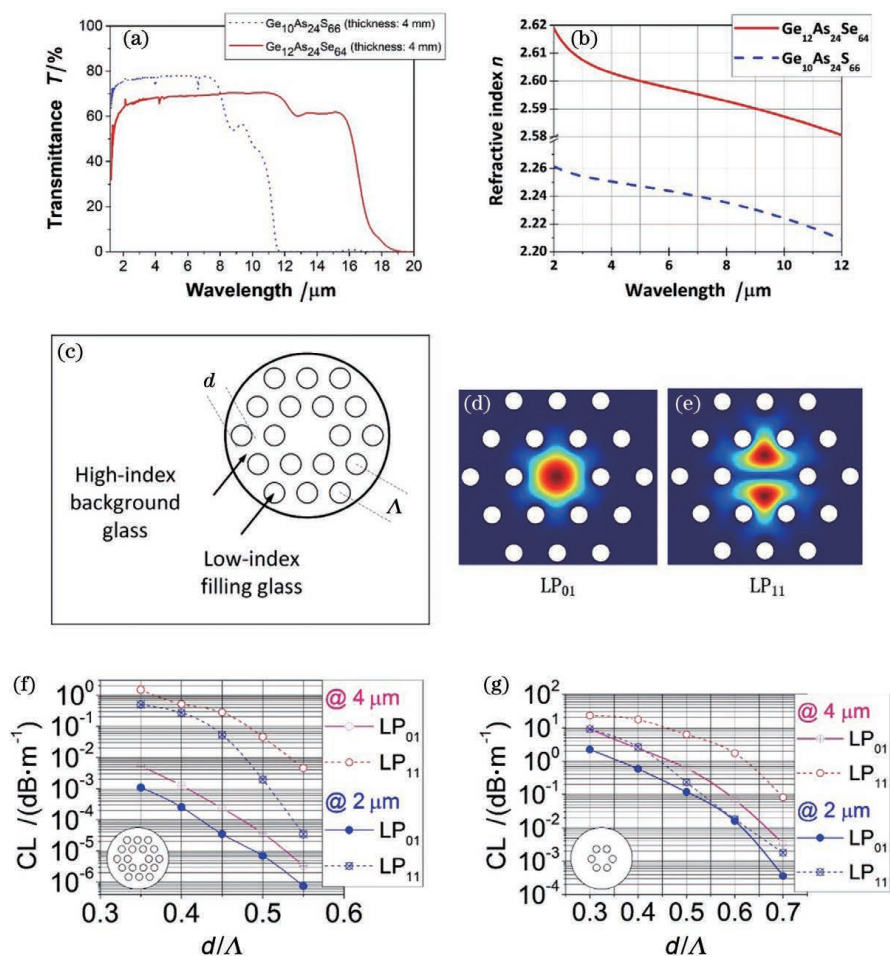


图 4 实测用于 ULMA PCF 的硫系玻璃基质材料光学性能和单模 ULMA ChG PCF 数值模拟结果。制备的 $\text{Ge}_{10}\text{As}_{24}\text{S}_{66}$ 、 $\text{Ge}_{12}\text{As}_{24}\text{Se}_{64}$ 玻璃材料的 (a) 中红外透过率曲线和 (b) 折射率曲线; 具有 2 圈微结构包层 ULMA ChG PCF 的 (c) 结构示意图、其 (d) 基模 LP_{01} 和 (e) 高阶模 LP_{11} 场示意图; 基于两种基础玻璃的具有 (f) 2 圈和 (g) 1 圈微结构的 ULMA ChG PCF 在芯径为 $80\ \mu\text{m}$ 时的基模 LP_{01} 和最低高阶模 LP_{11} 的泄漏损耗 (波长为 $2\ \mu\text{m}$ 和 $4\ \mu\text{m}$)

Fig. 4 Measured optical properties of host materials for ULMA ChG PCF and numerical simulations of single-mode ULMA ChG PCF. (a) Measured transmission and (b) refractive index curves of prepared $\text{Ge}_{10}\text{As}_{24}\text{S}_{66}$ and $\text{Ge}_{12}\text{As}_{24}\text{Se}_{64}$ glasses; (c) schematic of ULMA ChG PCF with two rings of low-index filling rods; calculated mode profiles of (d) LP_{01} and (e) LP_{11} ; calculated confinement losses (CL) of all-solid Ge-As-Se/Ge-As-S ULMA PCF with core diameter of $80\ \mu\text{m}$ at the wavelength of $2\ \mu\text{m}$ and $4\ \mu\text{m}$ of the PCFs with (f) 2-ring structure and (g) 1-ring structure

图 4(g) 所示分别为基于两种基础玻璃的具有 2 圈和 1 圈微结构的光纤在芯径为 $80\ \mu\text{m}$ 时的基模 LP_{01} 和最低高阶模 LP_{11} 在 $2\ \mu\text{m}$ 和 $4\ \mu\text{m}$ 波长的泄漏损耗。可以看到: 当 $d/\Lambda \leq 0.45$ 时, 具有 2 圈微结构的光纤的 LP_{01} 模和 LP_{11} 模的泄漏损耗分别为 $\sim 1\ \text{dB/km}$ 和 $\sim 1\ \text{dB/m}$, 两者的泄漏损耗差超过 2 个数量级, 确保光纤在 $2\ \mu\text{m}$ 以上的中红外波段都能做到有效单模运行; 而对于具有 1 圈微结构的光纤, LP_{01} 模和 LP_{11} 模泄漏损耗差异不大, 允许单模运行的微结构区域参数仅落在 $d/\Lambda \approx 0.6$ 的狭窄区域, 这将增加光纤制备中精确控制微结构尺寸的难度。因此, 选择光纤中的低折射率微结构圈数为

2 圈。

图 5(a) 所示为拉制出的单模全实心 ULMA ChG PCF 的扫描电镜图像, 所用扫描电镜型号为 JEOL JSM-6510。从电镜图像可以看到, 光纤外径为 $520\ \mu\text{m}$, 芯径为 $91.2\ \mu\text{m}$, 相邻微结构“孔”中心间距 Λ 为 $(57.7 \pm 3.9)\ \mu\text{m}$, 微结构“孔”径 d 为 $(26.0 \pm 1.3)\ \mu\text{m}$, 由此得出光纤微结构参数 d/Λ 在 0.45 左右, 落在大模场 PCF 实现有效单模时微结构参数 d/Λ 的要求范围内。按照光纤电镜照片给出的光纤微结构参数进行数值模拟, 计算得出在 $4.0\ \mu\text{m}$ 波长处, PCF 的基模 LP_{01} 的模场面积为 $(5200 \pm 200)\ \mu\text{m}^2$, 对应的 MFD 约为 $80\ \mu\text{m}$ 。

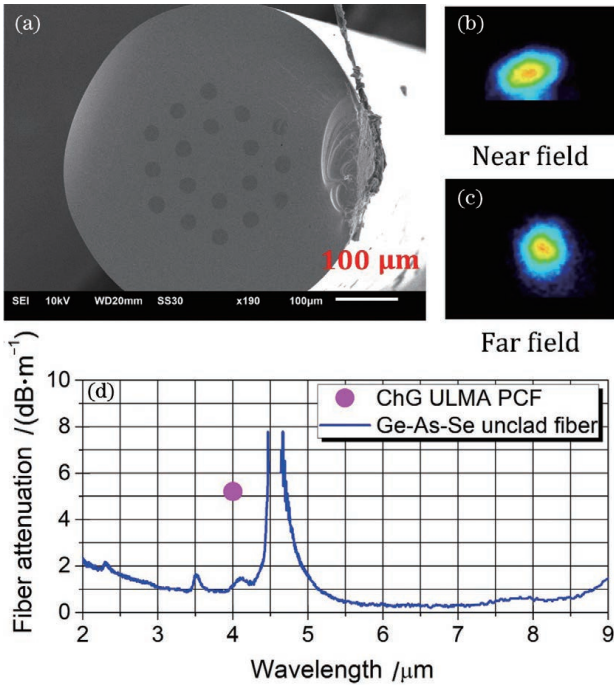


图 5 实测单模 ULMA ChG PCF 传输特性。(a)单模 ULMA ChG PCF 扫描电镜照片;在 4 μm 波长处观察到的 ULMA ChG PCF 的(b)近场和(c)远场模式照片;(d)利用截断法测试得到的 ULMA ChG PCF 在 4 μm 波长处的传输损耗和无包层 Ge₁₂As₂₄Se₆₄ 玻璃多模光纤的 2~9 μm 宽谱损耗曲线

Fig. 5 Measured guiding performances of fabricated single-mode ULMA ChG PCF. (a) Scanning electron microscope (SEM) photograph of single-mode ULMA ChG PCF; (b) near-field and (c) far-field mode profiles observed from ULMA ChG PCF output end at 4 μm; (d) measured loss spectra of unclad Ge₁₂As₂₄Se₆₄ glass fiber in 2~9 μm and ULMA ChG PCF at 4 μm

将波长可调谐的中红外光学参量放大器 (OPA; Orpheus, Light Conversion) 作为光源,对制备的单模 ULMA ChG PCF 进行测试表征。

借助工作波段为 2~16 μm 的光束质量分析仪 (WinCamD-IR-BB, Dataray Inc.) 测试了光纤输出端光束在远场不同距离的模式发散角,获得光纤在 2.5 μm 和 4.0 μm 波长处的数值孔径 NA 分别为 0.024±0.002 和 0.015±0.002。

图 5(b)、(c)所示分别为制备的 PCF 输出端在 4 μm 波长处的近场和远场模式照片,可以看到,光纤远场和近场模式强度呈现高斯分布。结合上述超低 NA 和近、远模场强度高斯分布的结果,在实验上确认了所制备的 MFD 为 80 μm 的 ULMA ChG PCF 为有效单模光纤。

图 5(d)所示为利用截断法测得的 ULMA ChG PCF 在 4 μm 处的传输损耗和无包层 Ge₁₂As₂₄Se₆₄ 玻璃多模光纤的宽谱损耗曲线,其中宽谱损耗曲线是在傅里叶变换红外光谱仪 (FTIR, Tensor 27, Bruker) 上测试,通过对一段无包层多模光纤多次截断测试其宽谱透过信号得到。可以看到,无包层多模光纤在 2~9 μm 波段的损耗普遍低于 2.1 dB/m,仅在 2.3 μm、3.5 μm、4.1 μm、4.6 μm 处呈现出玻璃中残余的 Se-H 杂质的特征吸收峰。而 ULMA ChG PCF 在 4.0 μm 处的传输损耗为 (5.2 ± 0.2) dB/m,高出纤芯玻璃多模光纤约 4 dB/m。从纤芯玻璃光纤到 PCF,增加的损耗应该来自背景材料玻璃和填充材料玻璃界面缺陷散射、多次热处理后玻璃内部产生的散射缺陷、Se-H 杂质的特征吸收峰的拖尾等。通过进一步优化光纤设计、提纯采用的 ChG、优化拉丝工艺减少界面缺陷散射等,预测单模 ULMA ChG PCF 在整个 3~8 μm (特别是重要的 3~5 μm) 波段的传输损耗能够降低到 0.5~1 dB/m 的水平。

在上述的数值孔径、损耗、模场等测试表征中,OPA 光源的入射平均功率被控制在 1 mW 以下,以降低高峰值功率的超快激光脉冲在基于高折射率 ChG 的光纤中由光谱展宽造成的测试不确定性。

3.3 低弯曲损耗的少模 ULMA ChG PCF

在上述测试中,单模 ULMA ChG PCF 被保持为近乎笔直的状态,其弯曲半径大于 1 m,这是因为 ULMA PCF 基模 LP₀₁ 的有效折射率和包层折射率差极小,极低的数值孔径导致沿纤芯传输的光场能量对光纤弯曲状态非常敏感,通常要求光纤处于笔直状态,但是这样会牺牲光纤可弯曲的优点。而可弯曲特性是光纤能够实现结构紧凑、便携性高的光纤器件最重要的优点之一。

光纤弯曲损耗可以用简化的等效折射率模型^[48]来表示: $n_{eq}^2(x, y) = n^2(x, y) \cdot \left(1 + \frac{2x}{R}\right)$,其中 $n_{eq}^2(x, y)$ 为弯曲后光纤纤芯有效折射率分布, $n^2(x, y)$ 为直光纤时纤芯材料折射率分布 [图 6(a)], R 为光纤弯曲半径。当光纤在 X 平面上弯曲时 [图 6(b)], 沿 x 方向引起一个折射率梯度变化量 $n^2(x, y) \cdot \frac{2x}{R_{bend}}$, 该变化量在弯曲外侧为正值,在弯曲内侧为负值。因此在弯曲状态下,纤芯中光场被推向外侧,传输能量进入微结构包层,导致泄漏损耗增加、模场减小。

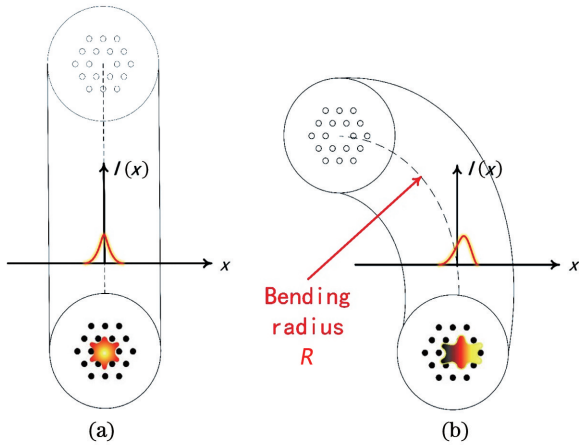


图 6 超低数值孔径 PCF 弯曲损耗来源。(a)直光纤；
(b)弯曲光纤

Fig. 6 Origin of bending loss in PCF with ultra-low NA.
(a) Straight fiber; (b) bent fiber

通常情况下,可以通过以下两种手段抑制弯曲损耗:1)在等效折射率模型基础上,当光纤沿 x 方向弯曲时,在弯曲光纤外侧的 PCF 包层微结构上增加额外的补偿修饰,以减少基模的弯曲损耗;2)采用 ULMA 的少模光纤结构,激发时,大部分光场能量被耦合到基模上,由于基模的弯曲损耗远小于高阶模,弯曲只起到衰减高阶模的效果。以上两种方法都能够实现近单模 ULMA 光纤,下面的工作采用第二种方法,即通过选择性模式激发并适当弯曲 ULMA 少模光纤的方法,在 ChG PCF 中实现低弯曲损耗的 ULMA 近单模输出。

“无限单模”PCF 的实现是通过调节微结构尺寸参数 d/Λ 来实现的:当 $d/\Lambda \leq 0.45$ 时,其相邻孔之间的高折射率玻璃尺寸远小于基模 LP_{01} 的模场尺寸,但和最低高阶模 LP_{11} 的模场尺寸接近,这就使得基模 LP_{01} 具有较低的泄漏损耗,而其他高阶模(如最低高阶模 LP_{11})具有足够高的泄漏损耗,在一定的光纤长度内只有基模能够存在。该原理把“无限单模”PCF 的结构设计简化成一个以 $d/\Lambda = 0.45$ 为大致分界线的几何问题,同时这个分界线的大致位置与光纤材料的关联性可忽略不计。当继续增大 d/Λ 到 0.45 以上时,其相邻孔之间的高折射率玻璃尺寸远小于 LP_{01} 模和 LP_{11} 模的模场尺寸,但和其他高阶模的模场尺寸接近,从而使得 LP_{01} 模和 LP_{11} 模都具有较低的泄漏损耗,而其他高阶模具有足够高的泄漏损耗,最终的结果就是,双模会在一定的光纤长度内稳定存在。需要指出,这个稳定双模 PCF 的微结构尺寸区间及其双模工作波长范围与光纤中微结构圈数有关^[49]。

双模全实心 ULMA ChG PCF 同样采用 $Ge_{12}As_{24}Se_{64}$ 玻璃和 $Ge_{10}As_{24}S_{66}$ 玻璃作为高折射率背景玻璃和低折射率微结构填充玻璃。如图 7(a)所示,在原有两圈相同 d/Λ 结构参数的 PCF 的基础上,保持其中 16 个低折射率“孔”直径 d_1 和相邻孔周期性间距 Λ 的比值 d_1/Λ 为 0.40 左右,而在距离纤芯最近的一个正交方向(XX')上设置两个直径为 d_2 的“孔”,使得 d_2/Λ 为 0.55 左右,从而获得双模稳定运行的 ULMA PCF 结构。

双模全实心 ULMA ChG PCF 的制备同样采用图 3 所示的流程,区别仅在于用堆积法制备 PCF 光纤预制棒时,将纤芯 XX' 方向的预制棒外侧的两根均匀 $d_1/\Lambda \approx 0.40$ 的实心毛细管替换成 $d_2/\Lambda \approx 0.55$ 的实心毛细管。

图 7(b)所示为制备的 ChG PCF 扫描电镜照片,测得光纤纤芯直径为 $145 \mu\text{m}$, $\Lambda = 90 \mu\text{m}$, $d_1/\Lambda \approx 0.40$, $d_2/\Lambda \approx 0.55$ 。根据光纤微结构参数,计算了光纤的 LP_{01} 和 LP_{11} 模在 $2 \sim 8 \mu\text{m}$ 波段的约束损耗和有效模场面积 A_{eff} [图 7(c)、(d)]。可以看到,在 $2 \sim 5 \mu\text{m}$ 波段,基模 LP_{01} 和最低高阶模 LP_{11} 的约束损耗为 $0.1 \sim 1 \text{ dB/m}$,光纤结构支持双模的存在。而在 $2 \mu\text{m}$ 波长处,基模 LP_{01} 和最低高阶模 LP_{11} 的有效模场面积分别为 $10400 \mu\text{m}^2$ 和 $11300 \mu\text{m}^2$ 。与所有 18 个低折射率“孔”都维持 $d/\Lambda \approx 0.40$ 的情况相比较,两个边缘大“孔”的引入带来了两个作用:1)在不影响基模 LP_{01} 的约束损耗的同时,有效地降低了最低高阶模 LP_{11} 的约束损耗值,从而使光纤从有效单模光纤变成了有效双模光纤;2)在不影响 LP_{01} 模的模场面积的同时,有效地降低了 LP_{11} 模的模场面积,使得 LP_{11} 模在光纤横截面上的能量分布集中在光纤纤芯对称中心周围,这样有助于提高其抗弯曲能力。

图 8 所示为 $2 \mu\text{m}$ 波长处的弯曲损耗实验结果。实验中光纤沿图 7(a)所示的 XX' 方向弯曲,最小弯曲半径 R 为 12.7 cm。可以看到,当 $2 \mu\text{m}$ 激光在光纤入射端的聚焦光斑直径约为 $75 \mu\text{m}$ (即光纤入射端聚焦光斑直径相当于基模 LP_{01} 的 MFD 的 65%)时,弯曲损耗为 2.5 dB/m [图 8(a)],且其输出模式未能接近单模输出[图 8(a)左上插图];而当聚焦光斑直径约为 $100 \mu\text{m}$ (即光纤入射端聚焦光斑直径约为基模 LP_{01} 的 MFD 的 85%,意味着入射激光耦合到基模 LP_{01} 的能量比例增加)时,弯曲损耗减小到 0.7 dB/m [图 8(b)],其输出模式接近单模输出[图 8(b)左上插图]。

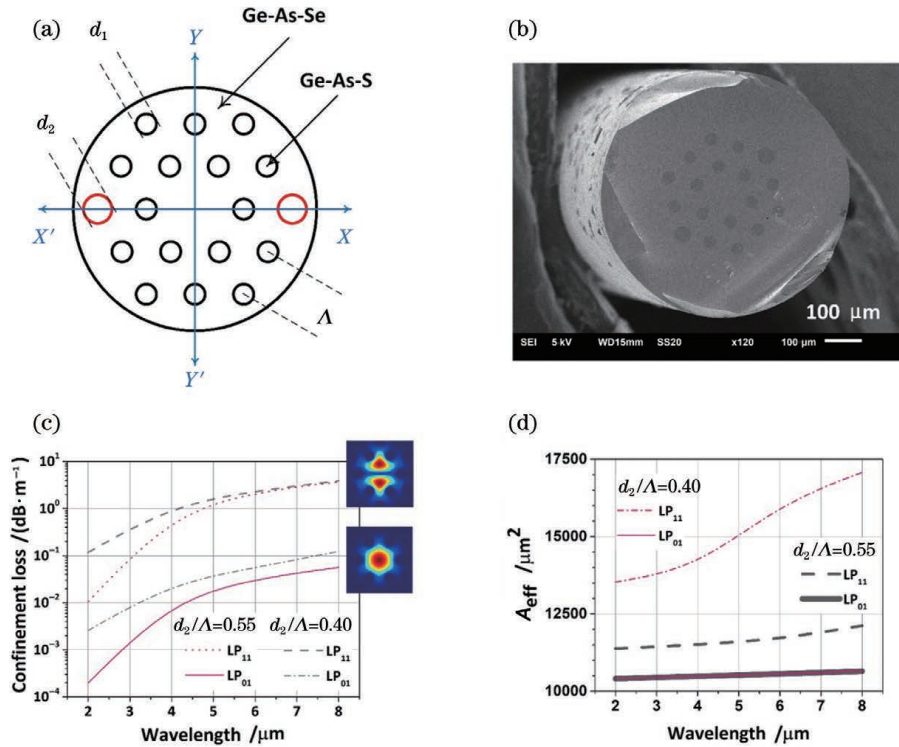


图 7 双模 ULMA ChG PCF 微结构和数值仿真结果。(a) 双模 ULMA ChG PCF 结构示意图; (b) 制备出的双模 ULMA ChG PCF 扫描电子显微图像; (c) 数值模拟计算的 PCF 在 d_2/Λ 参数增大到 0.55 与其未改变时的 LP_{01} 和 LP_{11} 模在 2~8 μm 波段内的约束损耗; (d) 数值模拟计算的 PCF 在 d_2/Λ 参数增大到 0.55 与其未改变时的 LP_{01} 和 LP_{11} 模在 2~8 μm 波段内的有效模场面积 A_{eff}

Fig. 7 Microstructure and numerical simulation of dual-moded ULMA ChG PCF. (a) Schematic of dual-moded ULMA ChG PCF; (b) SEM image of fabricated dual-moded ULMA ChG PCF; (c) calculated CLs of LP_{01} and LP_{11} modes of the fabricated fiber ($\Lambda = 90 \mu\text{m}$, $d_1/\Lambda = 0.40$, and $d_2/\Lambda = 0.55$) in the range of 2–8 μm , in comparison with the PCF with uniform $d/\Lambda = 0.40$ ($d_1 = d_2$) and $\Lambda = 90 \mu\text{m}$; (d) calculated A_{eff} of LP_{01} and LP_{11} modes of the fabricated fiber ($\Lambda = 90 \mu\text{m}$, $d_1/\Lambda = 0.40$, and $d_2/\Lambda = 0.55$) in the range of 2–8 μm , in comparison with the PCF with uniform $d/\Lambda = 0.40$ ($d_1 = d_2$) and $\Lambda = 90 \mu\text{m}$

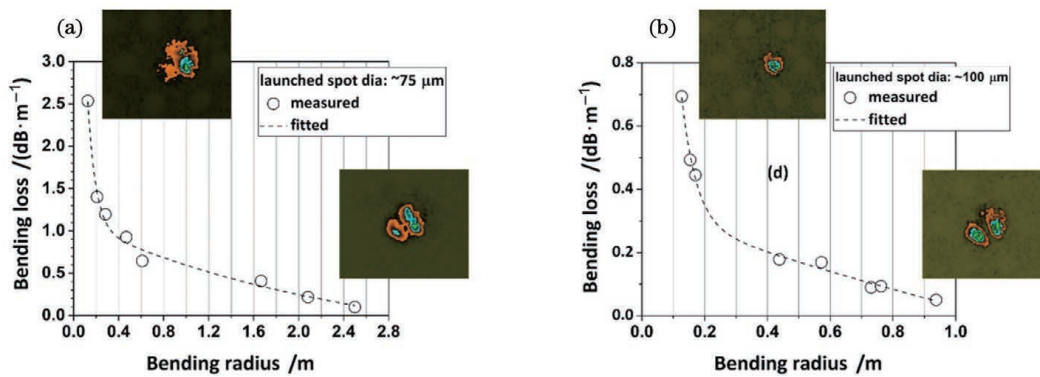


图 8 双模 ULMA ChG PCF 在不同入射激光光斑直径时测试得到的弯曲损耗与弯曲半径的关系。(a) ~75 μm ; (b) ~100 μm

Fig. 8 Measured bending loss and fitting with exponential decay function of dual-moded ULMA ChG PCF with bending radius under different diameters of the incident 2- μm laser spot. (a) ~75 μm ; (b) ~100 μm

实验结果初步证明,通过选择性激发,把主要的光场能量耦合到少模光纤的基模中,可以有效地降

低具有百 μm 以上超大 MFD ChG PCF 的弯曲损耗,并实现近单模输出。

3.4 微小折射率起伏和 ULMA PCF 波导特性的关联性

目前石英玻璃 ULMA PCF 的最大 MFD 已经达到了 $205\ \mu\text{m}$ ^[41], 而上面介绍的 ULMA ChG PCF 的最大 MFD 也已达 $115\ \mu\text{m}$ ^[46]。一个感兴趣的问题是, ULMA PCF 的“天花板”在哪里? 或者说, 实现本文提到的单模光纤 MFD 提升到 $100\sim 200\ \mu\text{m}$ 目标的技术瓶颈是什么?

ULMA PCF 波导特性源自基于折射率导光机制的微结构 PCF 只支持泄漏模式的导光机理, 因此, 通过光纤微结构参数的优化设计来精确调控不同阶导模的有效折射率值是实现该类 PCF 波导特性(损耗和模式等)的关键。普通 $10\ \mu\text{m}$ 芯径的单模光纤的 NA 约为 0.2, 其纤芯和包层折射率差高达 8×10^{-3} 。而对于具有 $100\sim 200\ \mu\text{m}$ MFD 的 ULMA ChG PCF(背景材料折射率约为 2.4), 其基模和包层的有效折射率差在 $5\times 10^{-5}\sim 1\times 10^{-5}$ 范围内。作为参考, 具有同样 MFD 的 ULMA 石英玻璃 PCF(背景材料折射率约为 1.45), 其基模和包层的有效折射率差在 $5\times 10^{-6}\sim 1\times 10^{-6}$ 范围内。因此, 实现 $200\ \mu\text{m}$ MFD 的 ULMA ChG PCF, ChG 基质中 10^{-5} 量级微小折射率起伏是破坏其 ULMA 单模运行的根源。对于具有同样 MFD 的 ULMA 石英玻璃 PCF, 由于其基质材料折射率远小于 ChG 的折射率, 破坏其 ULMA 单模运行的微小折射率起伏在 10^{-6} 量级。

光学玻璃中的微小折射率起伏被定义为玻璃的光学均匀性, 如肖特公司制备的大尺寸硼硅酸盐光学玻璃 BK7, 其光学均匀性约为 2×10^{-6} ^[50]; 常用的掺钕磷酸盐激光玻璃, 其光学均匀性也在 2×10^{-6} 左右^[51]; 贺利氏公司生产的高纯石英玻璃的光学均匀性 $\leq 1\times 10^{-6}$ ^[52]。图 9 所示为本课题组早期测得的口径为 100 mm Ge-As-Se 玻璃的光学均匀性, 其折射率的最大值与最小值相差 1.4×10^{-4} , 所用测试仪器为英国精密光学工程公司生产的 Interfire 10.6 红外干涉仪, 工作波长为 $10.6\ \mu\text{m}$ 。从图 9 可以看到, 块样中的折射率起伏主要是因为大尺寸样品中心和边缘在玻璃冷却和退火过程中存在由温度梯度引起的残余应力, 而在玻璃的大部分区域内, 其折射率起伏在 10^{-5} 量级。

首先, 玻璃光学均匀性测试是在无明显光学缺陷(如微气泡、包裹物等)的高度均匀的光学玻璃样品上进行的, 该参数由光学玻璃熔融制备过程中化学组分的均匀程度和材料从熔融态冷却固化成玻璃

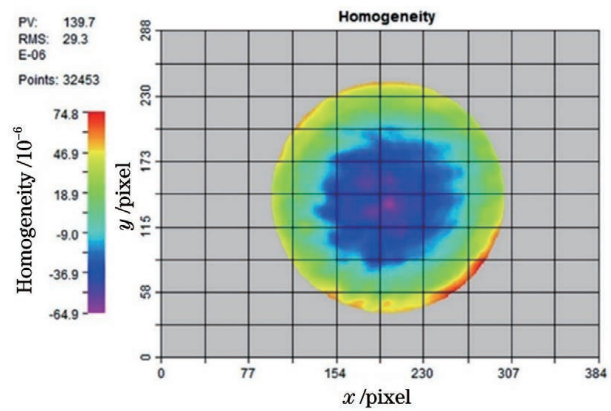


图 9 口径为 100 mm 的 Ge-As-Se 玻璃的光学均匀性测试结果

Fig. 9 Measured optical homogeneity of Ge-As-Se chalcogenide glass with 100-mm aperture

过程中的应力消除和玻璃密度均匀化两个过程的热历史决定。均匀熔融和精密退火是获得均匀光学玻璃的关键。

其次, 以上的玻璃光学均匀性测试结果是室温时的测试数据, 反映了在恒定室温下材料密度起伏的混乱程度(类似于玻璃材料组分在空间上随机分布的熵值)。在需要面向的百瓦级高功率激光应用场景中, 不可避免地会遇到由传输或产生高功率中红外激光带来的热负载问题, 从而在光纤纤芯中产生较大的温度梯度, 因此玻璃密度起伏的混乱程度必然加大, 导致玻璃的光学均匀性变差。这种材料的热光效应会在纤芯中形成一定的折射率梯度或起伏, 当温度诱导的微小折射率起伏在光纤横截面上占有较大的空间比例(即和低阶横模的空间分布尺寸相当)时, 必然导致低阶横模不稳定, 并破坏 ULMA PCF 的准单模运行条件, 这一点与稀土掺杂石英大模场光纤在高功率光纤激光器应用的情形类似^[53], 因此需要运用相应的热管理技术使得整个光纤处于较窄的温度波动区间, 以有效地抑制由热光效应引起的横模不稳定现象。

在目前玻璃制备水平下, ChG 的光学均匀性能够满足 $100\sim 200\ \mu\text{m}$ MFD 的 ULMA PCF 的制备要求, 但在实际高功率激光应用场景中, 需要执行精确的热管理才能抑制由高功率导致的热光效应及其产生的横模不稳定性。同时, 材料微小折射率起伏程度也是光纤散射损耗的最终来源, 进一步升级玻璃制备和光纤制备工艺, 降低 ChG PCF 中纤芯材料微小折射率起伏程度和减少散射缺陷, 可以大幅降低目前 ChG PCF 的传输损耗。

4 结 论

以突破中红外 ChG 光纤在 3~5 μm 高功率激光应用中面临的技术瓶颈为出发点,阐述了面向中红外百瓦级高功率激光应用的 ULMA ChG PCF 的研究进展。内容涵盖了中红外高功率激光应用对光纤的需求、中红外 ChG 材料的激光损伤特性、ULMA ChG PCF 的设计与制备、单模 ULMA ChG PCF 研究、低弯曲损耗的少模 ULMA ChG PCF 研究、材料微小折射率起伏与 ULMA ChG PCF 在高功率激光应用场景下的关联性。可以预测,通过优化玻璃制备和光纤制备工艺,可以将 ULMA ChG PCF 在中红外波段的传输损耗降低到 0.5~1 dB/m 的水平;同时制备工艺的改进,可将玻璃材料的光学均匀性控制在实现 100~200 μm MFD ULMA PCF 所需的 10^{-5} 以下水平;少模(或双模) ULMA ChG PCF 可以使超低数值孔径光纤的弯曲损耗降低到可使用范围;最后,在高功率应用时,对光纤进行精确的热管理,可以抑制由热光效应造成的横模不稳定效应。

本文希望通过对 ULMA ChG PCF 的研究,推动发展完全自主研发的中红外特种光纤技术,并在国家重点发展战略中的遥感监测、国防安全等领域作出贡献。

参 考 文 献

- [1] Schliesser A, Picqué N, Hänsch T W. Mid-infrared frequency combs[J]. *Nature Photonics*, 2012, 6(7): 440-449.
- [2] Yao Y, Hoffman A J, Gmachl C F. Mid-infrared quantum cascade lasers[J]. *Nature Photonics*, 2012, 6(7): 432-439.
- [3] Jackson S D. Towards high-power mid-infrared emission from a fibre laser [J]. *Nature Photonics*, 2012, 6(7): 423-431.
- [4] Mirov S B, Fedorov V V, Martyshkin D, et al. Progress in mid-IR lasers based on Cr and Fe-doped II-VI chalcogenides[J]. *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics*, 2015, 21(1): 292-310.
- [5] Nunes J J, Sojka, Crane R W, et al. Room temperature mid-infrared fiber lasing beyond 5 μm in chalcogenide glass small-core step index fiber [J]. *Optics Letters*, 2021, 46(15): 3504-3507.
- [6] Feng X, Poletti F, Camerlingo A, et al. Dispersion controlled highly nonlinear fibers for all-optical processing at telecoms wavelengths[J]. *Optical Fiber Technology*, 2010, 16(6): 378-391.
- [7] Sato S, Igarashi K, Taniwaki M, et al. Multihundred-watt CO laser power delivery through chalcogenide glass fibers [J]. *Applied Physics Letters*, 1993, 62(7): 669-671.
- [8] Blanchetière C, le Foulgoc K, Ma H L, et al. Tellurium halide glass fibers: preparation and applications [J]. *Journal of Non-Crystalline Solids*, 1995, 184: 200-203.
- [9] Sanghera J S, Aggarwal I D, Shaw L B, et al. Applications of chalcogenide glass optical fibers at NRL [J]. *Journal of Optoelectronics and Advanced Materials*, 2001, 3(3): 627-640.
- [10] Sincore A, Cook J, Tan F A, et al. Practical limits of power transmission through single-mode chalcogenide fibers [J]. *Optical Engineering*, 2018, 57(11): 111807.
- [11] Sincore A, Cook J, Tan F, et al. High power single-mode delivery of mid-infrared sources through chalcogenide fiber [J]. *Optics Express*, 2018, 26(6): 7313-7323.
- [12] Su J X, Dai S X, Jiang L, et al. Fabrication and bending strength analysis of low-loss $\text{Ge}_{15}\text{As}_{25}\text{Se}_{40}\text{Te}_{20}$ chalcogenide glass fiber: a potential mid-infrared laser transmission medium [J]. *Optical Materials Express*, 2019, 9(7): 2859-2869.
- [13] Bernier M, Fortin V, Caron N, et al. Mid-infrared chalcogenide glass Raman fiber laser [J]. *Optics Letters*, 2013, 38(2): 127-129.
- [14] Hu K, Kabakova I V, Büttner T F S, et al. Low-threshold Brillouin laser at 2 μm based on suspended-core chalcogenide fiber [J]. *Optics Letters*, 2014, 39(16): 4651-4654.
- [15] Petersen C R, Møller U, Kubat I, et al. Mid-infrared supercontinuum covering the 1.4-13.3 μm molecular fingerprint region using ultra-high NA chalcogenide step-index fibre [J]. *Nature Photonics*, 2014, 8(11): 830-834.
- [16] Yu Y, Zhang B, Gai X, et al. 1.8-10 μm mid-infrared supercontinuum generated in a step-index chalcogenide fiber using low peak pump power [J]. *Optics Letters*, 2015, 40(6): 1081-1084.
- [17] Martinez R A, Plant G, Guo K W, et al. Mid-infrared supercontinuum generation from 1.6 to >11 μm using concatenated step-index fluoride and chalcogenide fibers [J]. *Optics Letters*, 2018, 43(2): 296-299.
- [18] Jiao K, Yao J M, Wang X G, et al. 1.2-15.2 μm supercontinuum generation in a low-loss chalcogenide fiber pumped at a deep anomalous-dispersion region [J]. *Optics Letters*, 2019, 44(22): 5545-5548.

- [19] Zhang M J, Li L, Li T T, et al. Mid-infrared supercontinuum generation in chalcogenide fibers with high laser damage threshold [J]. *Optics Express*, 2019, 27(20): 29287-29296.
- [20] Qi S, Zhang B, Zhai C, et al. High-resolution chalcogenide fiber bundles for longwave infrared imaging [J]. *Optics Express*, 2017, 25(21): 26160-26165.
- [21] Ventura A, Slimen F B, Lousteau J, et al. Flexible Mid-IR fiber bundle for thermal imaging of inaccessible areas [J]. *Optics Express*, 2019, 27(15): 20259-20272.
- [22] Zhou W J, Lu Q Y, Wu D H, et al. High-power, continuous-wave, phase-locked quantum cascade laser arrays emitting at 8 μm [J]. *Optics Express*, 2019, 27(11): 15776-15785.
- [23] SBIR.GOV. High-power mid-infrared quantum cascade laser array with continuous-wave output power exceeding 100 W [EB/OL]. (2014-09-30) [2021-08-25]. <https://www.sbir.gov/sbirsearch/detail/696063>.
- [24] SBIR.GOV. High-power mid-infrared quantum cascade laser array with continuous-wave output power exceeding 100 W [EB/OL]. (2016-03-15) [2021-08-25]. <https://www.sbir.gov/sbirsearch/detail/1160125>.
- [25] Dudley J M, Genty G, Coen S. Supercontinuum generation in photonic crystal fiber [J]. *Reviews of Modern Physics*, 2006, 78(4): 1135-1184.
- [26] Shaw L B, Nguyen V Q, Sanghera J S, et al. IR supercontinuum generation in As-Se photonic crystal fiber [C]//Advanced Solid-State Photonics (TOPS), February 6-9, 2005, Vienna, Austria. Washington, D.C.: OSA, 2005: 864.
- [27] Robichaud L R, Duval S, Pleau L P, et al. High-power supercontinuum generation in the mid-infrared pumped by a soliton self-frequency shifted source [J]. *Optics Express*, 2020, 28(1): 107-115.
- [28] Carter A, Samson B N, Tankala K, et al. Damage mechanisms in components for fiber lasers and amplifiers [J]. *Proceedings of SPIE*, 2005, 5647: 561-571.
- [29] Smith A V, Do B T. Bulk and surface laser damage of silica by picosecond and nanosecond pulses at 1064 nm [J]. *Applied Optics*, 2008, 47(26): 4812-4832.
- [30] Gaida C, Gebhardt M, Stutzki F, et al. Thulium-doped fiber chirped-pulse amplification system with 2 GW of peak power [J]. *Optics Letters*, 2016, 41(17): 4130-4133.
- [31] 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.
- [32] Liu K, Liu J, Shi H, et al. High power mid-infrared supercontinuum generation in a single-mode ZBLAN fiber with up to 21.8 W average output power [J]. *Optics Express*, 2014, 22(20): 24384-24391.
- [33] Hu T, Jackson S D, Hudson D D. Ultrafast pulses from a mid-infrared fiber laser [J]. *Optics Letters*, 2015, 40(18): 4226-4228.
- [34] Li Z, Jia Z, Yao C, et al. 22.7 W mid-infrared supercontinuum generation in fluorotellurite fibers [J]. *Optics Letters*, 2020, 45(7): 1882-1885.
- [35] 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.
- [36] Zhang M J, Li T T, Yang Y, et al. Femtosecond laser induced damage on Ge-As-S chalcogenide glasses [J]. *Optical Materials Express*, 2019, 9(2): 555-561.
- [37] Wang X L, Zhang H W, Yang B L, et al. High-power ytterbium-doped fiber laser oscillator current situation and future developments [J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2021, 48(4): 0401004. 王小林, 张汉伟, 杨保来, 等. 高功率掺镱光纤振荡器: 研究现状与发展趋势 [J]. *中国激光*, 2021, 48(4): 0401004.
- [38] Eidam T, Rothhardt J, Stutzki F, et al. Fiber chirped-pulse amplification system emitting 3.8 GW peak power [J]. *Optics Express*, 2010, 19(1): 255-260.
- [39] Russell P. Photonic crystal fibers [J]. *Science*, 2003, 299(5605): 358-362.
- [40] Stutzki F, Jansen F, Liem A, et al. 26 mJ, 130 W Q-switched fiber-laser system with near-diffraction-limited beam quality [J]. *Optics Letters*, 2012, 37(6): 1073-1075.
- [41] Steinkopff A, Jauregui C, Stutzki F, et al. Transverse single-mode operation in a passive large pitch fiber with more than 200 μm mode-field diameter [J]. *Optics Letters*, 2019, 44(3): 650-653.
- [42] Klenke A, Breitkopf S, Kienel M, et al. 530 W, 1.3 mJ, four-channel coherently combined femtosecond fiber chirped-pulse amplification system [J]. *Optics Letters*, 2013, 38(13): 2283-2285.
- [43] Conseil C, Coulombier Q, Boussard-Plédel C, et al. Chalcogenide step index and microstructured single mode fibers [J]. *Journal of Non-Crystalline Solids*, 2011, 357(11/12/13): 2480-2483.
- [44] Yi C S, Dai S X, Zhang P Q, et al. Design of a novel single-mode large mode area infrared chalcogenide

- glass photonic crystal fibers[J]. *Acta Physica Sinica*, 2013, 62(8): 084206.
- 易昌申, 戴世勋, 张培晴, 等. 新型单模大模场红外硫系玻璃光子晶体光纤设计研究[J]. *物理学报*, 2013, 62(8): 084206.
- [45] Ren H, Qi S, Hu Y, et al. All-solid mid-infrared chalcogenide photonic crystal fiber with ultralarge mode area[J]. *Optics Letters*, 2019, 44(22): 5553-5556.
- [46] Feng X, Ren H, Xu F, et al. Few-moded ultralarge mode area chalcogenide photonic crystal fiber for mid-infrared high power applications[J]. *Optics Express*, 2020, 28(11): 16658-16672.
- [47] Feng X, Monro T M, Petropoulos P, et al. Solid microstructured optical fiber [J]. *Optics Express*, 2003, 11(18): 2225-2230.
- [48] Baggett J C, Monro T M, Furusawa K, et al. Understanding bending losses in holey optical fibers [J]. *Optics Communications*, 2003, 227 (4/5/6): 317-335.
- [49] Dong L, Peng X, Li J. Leakage channel optical fibers with large effective area [J]. *Journal of the Optical Society of America B*, 2007, 24(8): 1689-1697.
- [50] Schott Glass. TIE-26: homogeneity of optical glass [EB/OL]. [2021-08-25]. https://wp.optics.arizona.edu/optomech/wp-content/uploads/sites/53/2016/10/tie-26_homogeneity_of_optical_glass_us.pdf.
- [51] Hu L L, Chen S B, Tang J P, et al. Large aperture N31 neodymium phosphate laser glass for use in a high power laser facility [J]. *High Power Laser Science and Engineering*, 2014, 2: e1.
- [52] Heraeus-quarzglas. Quartz glass for optics data and properties [EB/OL]. [2021-08-25]. https://www.heraeus.com/en/hca/fused_silica_1/home_hca.html.
- [53] Jansen F, Stutzki F, Otto H J, et al. Thermally induced waveguide changes in active fibers[J]. *Optics Express*, 2012, 20(4): 3997-4008.

Progress in Chalcogenide Glass Photonic Crystal Fibers with Ultra-Large Mode Area

Feng Xian[†], Yang Zhiyong^{**}, Shi Jindan^{***}

Jiangsu Key Laboratory of Advanced Laser Materials and Devices, School of Physics and Electronic Engineering, Jiangsu Normal University, Xuzhou, Jiangsu 221116, China

Abstract

Significance Mid-infrared (mid-IR) spectral region contains two important atmospheric windows, i. e., the mid-wave infrared window (3–5 μm) and the longwave one (8–12 μm), where a laser can be transmitted over multiple kilometer along air paths. Furthermore, the vast majority of chemical and biological molecules demonstrate intrinsic fundamental vibration absorptions in the mid-IR domain. High-power mid-IR laser technology has recently advanced rapidly for a variety of applications including remote detection, medical treatment, security, metrology, and high-precision IR spectroscopy. Practically speaking, these applications require components with a minimum power handling capability of 100 W-level.

Compact and lightweight mid-IR fiber medium with excellent beam quality is in high demand in a variety of scenarios, including laser generation and power delivery in airborne and spaceborne platforms. Chalcogenide (ChG) glasses have the most transparent spectral range of any mid-IR glass. In comparison with the commonly used fibers whose host materials are silica, tellurite, and fluoride glasses, ChG fiber is the only candidate with a sufficiently low loss of <1 dB/m to cover the most useful 3–5 μm window or even a broader range. This is made possible by the weak chemical bonds that make up the ChG glass network. In addition, ChG glass possesses the highest refractive index and nonlinear refractive index in comparison with any other glass materials. As a result, ChG glass has been regarded as an ideal fiber host material for producing and delivering mid-IR lasers. However, due to the glass structure's weak chemical bonds, ChG has a low laser damage threshold. Hence, a conventional ChG glass fiber with a typical core diameter of 10 μm appears unsuitable for mid-IR high-power applications.

There have been numerous attempts to break through the mid-IR high-power barrier of ChG fiber usage. First, it has been demonstrated that optimizing the ChG glass composition does not improve the laser damage threshold. This is because it requires the introduction of strong chemical bonds into the glass and the longwave transmission

performance will have deteriorated unavoidably through this material approach. Another possibility is to use multimode fibers with a very large core. Indeed, multi-hundred-watt mid-IR laser power has been reported to be transmitted through a multimode ChG fiber with a core diameter of 1 mm. Such a method, however, comes at the expense of forfeiting the beam quality of the laser output, as well as the most important advantage of an optical fiber and the flexibility.

Large-mode-area (LMA) fiber technology, which has been successfully developed during the development of multiple kilowatts high-power silica fiber lasers, the only effective solution to such a mid-IR high-power dilemma of ChG fibers is then LMA fiber technology is capable of increasing the power handling capability of a ChG fiber while maintaining near-diffraction-limited beam quality. For instance, when the effective mode field diameter (MFD) of a single-mode fiber increases from 10 μm to 100 μm , the power handling capability is scaled up by two orders of magnitude. However, for an ultra-large-mode-area (ULMA) fiber with a large MFD of 100 μm , the numerical aperture (NA) must be <0.02 , corresponding to a $<10^{-4}$ index difference between the core and the cladding, which is beyond the current capability of fiber fabrication technology.

LMA photonic crystal fiber (PCF) is also called “endless single-mode PCF”. It can realize a single-mode fiber with precisely controlled ultra-low NA. An index-guided LMA PCF is single-moded in theory for all wavelengths or all scaled core diameters. When there is large discrimination between the confinement losses of the fundamental mode and the first higher-order mode in an LMA PCF, effective single modes are realized. This can be accomplished by carefully tailoring the PCF cladding’s microstructure parameters. The largest MFD of silica PCFs recorded thus far is 205 μm in a passive silica PCF. One can therefore be enlightened to apply the ULMA PCF technology to ChG fibers for high-power mid-IR laser usages.

Progress The host materials of the studied ULMA ChG PCFs are based on high-index $\text{Ge}_{12}\text{As}_{24}\text{Se}_{64}$ glass as the background material and low-index $\text{Ge}_{10}\text{As}_{24}\text{S}_{66}$ glass as the filling glass. The fibers were generated using the formal capillary stacking method (Fig. 3). A single-mode ULMA ChG PCF with an MFD of 80 μm was designed and built (Fig. 4 and Fig. 5). Because of the ultra-low NA of a single-mode PCF of this type, the fiber must be kept straight during use. We have then designed and fabricated a dual-moded ULMA ChG PCF (Fig. 7). When the bending radius is as small as 12 cm, a ULMA ChG PCF with selective mode-exciting exhibits a low bending loss of 0.7 dB/m (Fig. 8). The effective mode area of the fundamental mode of such a fiber at 2- μm is calculated to be 10500 μm^2 , corresponding to an MFD of 115 μm . It indicates that a few-moded ULMA ChG PCF is promising for obtaining the desired ULMA and excellent bending resistance.

Conclusions and Prospects In conclusion, the recent progress of ULMA ChG PCFs shows promise for high-power mid-IR applications at 100 W. Single modes and low bending loss are traded off in ultra-low-NA ULMA ChG PCFs. Finally, it is pointed out that refractive index fluctuation at the order of 10^{-5} in the ChG glasses (Fig. 9) is the ultimate barrier responsible for i) increasing the MFD of a ULMA ChG PCF to 200- μm or higher, and ii) mode instability of such a ULMA PCF during high-power operation. To address such a technical issue, additional glass purification and precise thermal management are proposed.

Key words laser optics; photonic crystal fibers; infrared optical fibers; supercontinuum generation; laser transmission