基于液芯光纤的中红外拉曼激光光源

田翠萍,汪滢莹,师红星,程昭晨,王 璞

北京工业大学激光工程研究院,北京 100124

摘要 搭建了一种集成结构的液芯光纤中红外拉曼激光光源,利用全光纤结构液芯耦合装置进行抽运注入。将中 心波长为 1064 nm、重复频率为 5 kHz、最大输出功率为 55 mW 的亚纳秒激光器作为抽运源,将不同比例的四氯化 碳和二硫化碳混合溶液充入中空光纤中,获得了至少 7 阶的拉曼信号输出。目前可测得的最长波长为2.08 μm,拉 曼阈值最低为 0.3 mW。通过搭建全光纤结构的液芯光纤耦合装置,获得了 90%以上的光纤耦合效率。实验发现 利用石英光纤产生的拉曼信号可以对液芯受激拉曼散射的产生起到促进作用。 关键词 激光光学; 受激拉曼散射;中红外激光;非线性光学;液芯光纤 中图分类号 O437.3 **文献标识码** A doi: 10.3788/LOP54.051405

Mid-Infrared Raman Laser Source Based on Liquid-Core Fiber

Tian Cuiping, Wang Yingying, Shi Hongxing, Cheng Zhaochen, Wang Pu Institute of Laser Engineering, Beijing University of Technology, Beijing 100124, China

Abstract An integrated structure of liquid-core fiber mid-infrared Raman laser source is established, and an all-fiber structure liquid-core coupling device is used to pump injection. A nanosecond laser with center wavelength of 1064 nm, repetition rate of 5 kHz and maximum output power of 55 mW is used as pump source, and a hollow core fiber is filled with the mixture with different proportions of carbon tetrachloride and carbon disulfide. At least sevenorder Raman signal is achieved, and the longest wavelength of 2.08 μ m and the minimum Raman threshold of 0.3 mW can be measured. The fiber coupling efficiency larger than 90% is achieved when we establish the liquid-core fiber coupling device with all-fiber structure. We also find that the Raman signal generated by silica fiber plays a prominent role in the generation of stimulated Raman scattering.

Key words laser optics; stimulated Raman scattering; mid-infrared laser; nonlinear optics; liquid-core fiber OCIS codes 140.3070; 290.5910; 060.4370

1 引 言

中红外光纤激光器因其特殊的输出波长而被广泛应用于国防、生物医疗、通信、传感等领域,成为近年来 的研究热点之一^[1-5]。利用光纤介质的受激拉曼效应可拓展中红外光谱,然而由于普通石英光纤存在本征吸 收,在大于 2 μm 波段的损耗极大,因此其应用受到了限制。为打破这种限制,研究人员致力于研究适合在 中红外波段传输的新材料及新掺杂光纤。通过在氟化物光纤和硫化物光纤中掺入铥离子、钬离子、铒离子 等,可实现多种激光波长输出,且这两种光纤具有较宽的中红外透明窗口,是获得中红外激光输出的良好介 质^[6-8],但拉制和掺杂控制等过程的实现比较困难,且成本高。利用液芯光纤也可以克服普通石英光纤受到 的限制,液芯光纤的导光范围由纤芯所充溶液决定,在纤芯充入具有高拉曼增益系数且在中红外透明的溶液

基金项目:国家自然科学基金(61377098)、北京市自然科学基金(4142006)

作者简介:田翠萍(1991—),女,硕士研究生,主要从事特种光纤、液芯拉曼及光纤激光器等方面的研究。

E-mail: tiancuiping1991@163.com

导师简介:汪滢莹(1983—),女,博士,副教授,主要从事光子晶体光纤的结构设计和制作,新结构、新材料光纤在光纤激 光器中的应用等方面的研究。E-mail: wangyingging@bjut.edu.cn (通信联系人)

收稿日期: 2016-12-27; 收到修改稿日期: 2017-01-05

可制成液芯光纤,液芯光纤可以很好地应用于中红外受激拉曼散射光谱的产生。通过在纤芯中充入酒精^[9]、四氯化碳(CCl₄)^[10]、二硫化碳(CS₂)^[11]、三氯溴甲烷(CBrCl₃)^[12]等来产生受激拉曼散射光谱的研究均已被报道,利用这些方法得到的受激拉曼散射光谱大多集中在可见光和近红外波段。这些方法存在很多不足:1)由于抽运波长较长,所需要的激发能量很高,受激拉曼散射光谱的产生比较困难;2)采用的空间耦合结构比较复杂,不利于实际应用。为进一步提高拉曼光谱的转化效率并降低液芯光纤产生拉曼光谱的阈值,采用可调谐激光外部种子注入和荧光种子注入等方法,用高强度信号代替分子的自发拉曼噪声信号,从而使液芯光纤中的受激拉曼散射光谱强度呈线性增加。这两种方法均存在一定的缺陷:1)利用可调谐激光外部种子注入会增加系统的复杂度,且注入波长单一;2)荧光染料的激发波段通常为可见光,限制了液芯光纤在其他波段的应用,且荧光染料的掺入会使拉曼增益介质受到污染^[11]。

具有高耦合效率、高集成度和灵活性的全光纤耦合结构是液芯光纤实用化的基础。2012年,Kieu等^[13] 采用熔接法将石英毛细管与切有角度的单模光纤(SMF-28)熔接并制成全光纤结构,在熔接点外部密封一个 去底的小瓶用于存放液体,带角度熔接便于形成一个小间隙,从而使液体流通形成液芯,这种结构的制作难 度较大,它要求两种光纤有严格的重叠且不塌缩空气孔,否则无法形成牢靠的连接点。2013年,Xiao等^[14] 利用机械熔接法将毛细管与标准光纤套在经过拉锥的毛细管中,先密封一端形成容器,等液体充满毛细管后 再密封另外一端。这两种方法均能获得高光纤耦合效率,但不够灵活,只适用于较低功率激光的应用,若使 用高功率激光则容易将熔接点打坏,从而造成不可逆的损伤。

本文研究了一种基于液芯光纤的中红外拉曼激光光源。该光源系统由一个抽运激光器、全光纤耦合系统和一段液芯光纤组成。抽运激光器的中心波长为1064 nm,重复频率为5 kHz,最大输出功率为55 mW,脉冲宽度小于1 ns,线宽约为0.2 nm。全光纤耦合系统采用在液体环境中的 SMF-28 与液芯光纤的对准耦合,通过三维调整架的实时精确调节,使得光纤耦合效率达到90%以上,该系统的灵活性很高,并可在相对较高的功率下运转。抽运光耦合进液芯光纤后,产生了最大波长达2.08 μm 的拉曼激光输出。

2 实验装置

所搭建的实验装置如图1所示,主要由抽运激光器、可调衰减片、液芯光纤和光谱仪等组成。可调衰减 片用于调节抽运激光器的输出能量,输出激光先经透镜耦合进一段1m长的SMF-28中,再与液芯光纤实现 全光纤耦合。在液体环境下实现SMF-28与液芯光纤的对准耦合,通过三维调整架调节耦合,得到了90% 以上的耦合效率,且在耦合过程中可进行实时精确调节,输入光纤可随时更换。

实验所用抽运激光的中心波长为 1064 nm,重复频率约为 5 kHz,脉冲宽度为 1 ns,平均功率约为 55 mW,质量因子 M² <1.3,光谱线宽小于 0.2 nm。选用实验室自制的融石英毛细管,纤芯直径为 12 μm, 外径为 125 μm。该融石英毛细管与 SMF-28 完全匹配,将不同比例的 CS₂ 和 CCl₄ 的混合溶液充入纤芯中



图 1 实验装置示意图 Fig. 1 Schematic of experimental setup

以制成液芯光纤。CS₂和 CCl₄具有大的三阶非线性折射率,广泛应用于非线性光学系统中,且这两种溶液 在近、中红外波段为透明色,是用于产生近、中红外拉曼散射的良好液体介质,因此选用这两种溶液作为拉曼 增益介质。CS₂的拉曼增益系数为 1.3×10^{-11} m/W,拉曼频移为 656 cm⁻¹; CCl₄的拉曼增益系数为 1.6×10^{-12} m/W,拉曼频移为 459 cm⁻¹。CCl₄和 CS₂对波长为 1 μ m 激光的折射率分别约为 1.45 和 1.59。 选用这两种折射率差较大的溶液,并根据不同的纤芯大小调配溶液混合比例,使之满足准单模传播,从而保 证光传输的稳定性及光束质量。

3 实验结果与讨论

实验中,首先选用了长度为 3.5 m 的融石英毛细管,在纤芯内充入 CCl₄ 溶液体积分数为 80%和 CS₂ 溶液体积分数为 20%的混合溶液。由于肉眼对波长为 1 μm 的激光不可见,在调节耦合时,先用波长为 635 nm的红光进行耦合,再接入波长为 1 μm 的激光,并在低功率下进行微调,确定耦合达到最佳后再增大 抽运功率。

由于产生的拉曼光谱范围较宽,需采用不同的光谱探测设备进行测量。这里采用测量范围为 600~ 1700 nm 的光谱仪测量 900~1500 nm 波段,采用测量范围为 1200~2400 nm 的光谱仪测量 1500~2400 nm 波段。由光谱仪的显示结果可以看出,当功率达到 0.3 mW 时,开始出现一阶斯托克斯光,继续增加抽运功 率,当一阶斯托克斯光达到一定强度后,开始出现二阶斯托克斯光。随着抽运功率的增加,开始出现一阶反 斯托克斯光,且强度比较弱。若继续增加抽运功率,更高阶的斯托克斯光逐级出现,并产生了一定的展宽现 象,而且斯托克斯光向长波方向的展宽比向短波方向的展宽更加明显,多阶拉曼信号峰基底在高功率下产生 展宽并相互重合,如图 2 所示。当抽运功率达到 8 mW 时,出现 7 阶斯托克斯光谱,波峰位于 2080 nm 处。 由于受光谱仪可测波段的限制,无法测量 8 阶以上的斯托克斯光谱。图中 CS₂ 拉曼信号强度相比 CS₂ 弱很多,并 且只激发出一阶谱线。这是因为 CS₂ 的拉曼增益比 CCl₄ 一个数量级,更容易产生拉曼信号输出,并消耗 抽运能量。当 CCl₄ 溶液比例大时,仍然只能看到很弱的 CCl₄ 拉曼信号峰。图 2 为光纤长度为 3.5 m、纤芯直 径为 12 μm、纤芯充入 CCl₄ 溶液体积分数为 80%和 CS₂ 溶液体积分数为 20%的混合溶液时的受激拉曼散射光 谱,图中 S1~S7 为第1~7阶斯托克斯光谱,AS1 为一阶反斯托克斯光谱。表 1 为波长为 1 μm 激光激发 CS₂ 产 生的受激拉曼波长的理论计算值与实测值对比,实验测得的各阶斯托克斯光波长与理论计算值基本一致。

抽运波长为 1064 nm 时,用 CCD 相机测量得到的 CS₂ 液芯光纤的受激拉曼散射信号的输出光斑图如 图 3所示。通过调节耦合,可以得到很好的准单模输出。在产生了多阶拉曼信号后,输出功率明显降低,且







表 1 波长为 1 μm 的激光激发 CS₂ 产生的受激拉曼散射光波长的理论计算值与实测值

Table 1 Theoretical calculated and measured stimulated Raman scattering wavelengths of CS_2 excited by laser of 1 μ m

Stimulated Raman scattering light	S1	S2	S3	S4	S 5	S6	S7	AS1
Theoretical calculated wavelength $/ nm$	1144.4	1237.3	1346.5	1477.0	1635.5	1832.0	2082.0	995.0
Measured wavelength /nm	1144.5	1237.3	1346.5	1476.8	1635.0	1831.4	2081.1	995.0



图 3 (a)抽运波长为 1064 nm 时, CS₂ 液芯光纤的模场分布图; (b) Y 方向光强分布; (c) X 方向光强分布 Fig. 3 (a) Mode field distribution of CS₂-filled capillary fiber when pump wavelength is 1064 nm;

(b) light intensity distribution of Y-direction; (c) light intensity distribution of X-direction

输出功率为输入功率的10%,说明拉曼信号的产生过程中有明显的声子消耗。通过控制液芯光纤的长度并 增加抽运输入功率,可以有效增加拉曼信号的功率。

此外,测量了不同混合比例下的液芯光纤拉曼信号,发现当 CCl₄ 溶液的体积分数高达 90%时,产生的 拉曼信号仍然以 CS₂ 的受激拉曼信号为主。为增强 CCl₄ 的受激拉曼信号峰,引入了对应谱段的拉曼信号。 由于石英的拉曼频移与 CCl₄ 相近,加长液芯光纤前的 SMF-28,抽运经过 SMF-28 后产生了微弱的拉曼信 号,再将拉曼信号注入到液芯光纤中。

抽运激光经过长度为 5 m 的 SMF-28 后的光谱如图 4 所示,在激光作用下,产生了二阶微弱的石英拉曼 频移信号,输出功率由 55 mW 降低到 35 mW。将带有石英拉曼信号的抽运光输入到长度为 1 m、纤芯充入 CCl₄ 溶液体积分数为 80% 和 CS₂ 溶液体积分数为 20%的混合溶液的液芯光纤中,最终产生了如图 5 所示 的受激拉曼散射信号光谱。可以看出,CCl₄ 的拉曼效应被增强了。分析可知,由于 CCl₄ 的拉曼频移与石英 相近,因此在相应的拉曼增益带上,CCl₄ 的斯托克斯拉曼信号峰被增强,相当于一个增益放大的过程。当 CCl₄ 和 CS₂ 的一阶斯托克斯光足够强后,又分别作为两种溶液次级斯托克斯光的抽运光,产生了比较复杂 的多阶拉曼输出,在 1000~1500 nm 的波长范围内产生了近 10 根拉曼谱线。









图 5 受激拉曼散射信号光谱

Fig. 5 Spectrum of stimulated Raman scattering signal

4 结 论

研究了一种基于液芯光纤的中红外拉曼光源,利用光纤耦合效率为 90%以上的可调全光纤液芯耦合结构进行抽运注入。将波长为 1064 nm、重复频率为 5 kHz、脉冲宽度小于 1 ns 的激光器作为抽运源,当液芯光纤直径为 12 μm、长度为 3.5 m时,产生了 7 阶斯托克斯光和 1 阶反斯托克斯光输出,目前可测得的最大波长达到2.08 μm。产生的拉曼信号可通过掺铥光纤继续放大。下一步将结合光纤熔接、光纤后处理技术,制作更高集成度的液芯光纤,并将其应用于荧光探测、生物检测、传感器、非线性光学和微流体激光器等领域。

参考文献

- [1] Baudelet M, Willis C C C, Shah L, et al. Laser-induced breakdown spectroscopy of copper with a 2 μm thulium fiber laser[J]. Optics Express, 2010, 18(8): 7905-7910.
- [2] Li Z, Heidt A M, Daniel J M O, et al. Thulium-doped fiber amplifier for optical communications at 2 μm[J]. Optics Express, 2013, 21(8): 9289-9297.
- [3] Mingareev I, Weirauch F, Olowinsky A, et al. Welding of polymers using a 2 μm thulium fiber laser[J]. Optics & Laser Technology, 2012, 44(7): 2095-2099.
- [4] Hardy L A, Wilson C R, Irby P B, et al. Rapid thulium fiber laser lithotripsy at pulse rates up to 500 Hz using a stone basket[J]. IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics, 2014, 20(5): 0902604.
- [5] Zhao Zhigang, Shen Lifeng, Jiang Hongbo, et al. Output of mid-infrared laser with narrow spectral width in implementation of optical parametric oscillator and oscillator power amplifier [J]. Chinese J Lasers, 2016, 43(10): 1001008.

赵志刚, 沈利沣, 姜洪波, 等. 光参量振荡器和光参量放大器实现窄谱宽中红外激光输出[J]. 中国激光, 2016, 43 (10): 1001008.

- [6] Chen Yali, Yang Weibing. All-solid chalcogenide microstructured optical fiber with two zero-dispersion mid-infrared wavelengths[J]. Laser & Optoelectronic Progress, 2016, 53(6): 060605.
 陈亚丽,杨伟兵.中红外双零色散全固硫系微结构光纤[J].激光与光电子学进展, 2016, 53(6): 060605.
- [7] Wang Cui, Dai Shixun, Zhang Peiqing, *et al*. Research progress of infrared supercontinuum generation in chalcogenide glass fibers[J]. Laser & Optoelectronic Progress, 2015, 52(3): 030001.
 汪 翠,戴世勋,张培晴,等.基于硫系玻璃光纤的红外超连续谱的研究进展[J].激光与光电子学进展, 2015, 52 (3): 030001.
- [8] Liu Cong, Wei Chen, Luo Hongyu, et al. Progress of mid-infrared Raman fiber lasers [J]. Laser Journal, 2015, 36 (10): 7-12.

刘 聪, 韦 晨, 罗鸿禹, 等. 中红外光纤拉曼激光器的研究进展[J]. 激光杂志, 2015, 36(10): 7-12.

- [9] Yiou S, Delaye P, Rouvie A, et al. Stimulated Raman scattering in an ethanol core microstructured optical fiber[J]. Optics Express, 2005, 13(12): 4786-4791.
- [10] Tian Cuiping, Wang Yingying, Gao Shoufei, *et al*. Low-threshold stimulated Raman scattering based on liquid-filled hollow-core photonic crystal fiber[J]. Journal of Beijing University of Technology, 2015, 41(12): 1856-1860.
 田翠萍,汪滢莹,高寿飞,等. 基于液体纤芯光子晶体光纤的低阈值受激拉曼散射[J]. 北京工业大学学报, 2015, 41 (12): 1856-1860.
- [11] Ma Honglei, Jin Haipeng, Yang Rui. External fluorescence seeding enhanced stimulated Raman scattering in liquid-core optical fiber[J]. Chinese J Lasers, 2013, 40(1): 0115001.

马宏磊,金海鹏,杨 睿.外部荧光种子植入法增强液芯光纤的受激拉曼散射[J].中国激光,2013,40(1):0115001.

- [12] Chraplyvy A R, Bridges T J. Infrared generation by means of multiple-order stimulated Raman scattering in CCl₄-and CBrCl₃-filled hollow silica fibers[J]. Optics Letters, 1981, 6(12): 632-633.
- [13] Kieu K, Schneebeli L, Norwood R A, et al. Integrated liquid-core optical fibers for ultra-efficient nonlinear liquid photonics[J]. Optics Express, 2012, 20(7): 8148-8154.
- [14] Xiao L M, Wheeler N V, Healy N, et al. Integrated hollow-core fibers for nonlinear optofluidic applications[J]. Optics Express, 2013, 21(23): 28751-28757.