

引用格式: SHE Lin, XU Niannian, YANG Peilong, et al. Supercontinuum Generation from Tapered As<sub>2</sub>S<sub>3</sub> Glass Photonic Crystal Fiber[J]. Acta Photonica Sinica, 2022, 51(11):1106002

余琳,许念念,杨佩龙,等. 基于 As<sub>2</sub>S<sub>3</sub>玻璃拉锥光子晶体光纤的超连续谱技术[J]. 光子学报,2022,51(11):1106002

# 基于 As<sub>2</sub>S<sub>3</sub>玻璃拉锥光子晶体光纤的超连续谱技术

余琳<sup>1</sup>,许念念<sup>1</sup>,杨佩龙<sup>2,3</sup>,张培晴<sup>2,3</sup>,李真睿<sup>1</sup>,王鹏飞<sup>1</sup>,孙伟民<sup>1</sup>

(1 哈尔滨工程大学 物理与光电工程学院 纤维集成光学教育部重点实验室, 哈尔滨 150001)

(2 宁波大学 高等技术研究院 红外材料与器件实验室, 浙江 宁波 315211)

(3 浙江省光电探测材料及器件重点实验室, 浙江 宁波 315211)

**摘要:**为了探索硫系玻璃光纤器件在中红外波段超连续光源的潜在应用,自主制备了一种硫系玻璃光子晶体光纤,该光纤由组分为 As<sub>2</sub>S<sub>3</sub>的纤芯和呈六边形排列的空气孔的包层所组成。利用波长为 2.87 μm,重复频率为 42 MHz,脉冲宽度为 173 fs 的中红外光纤激光器为泵源,利用拉锥硫系玻璃光子晶体光纤研制了中红外超连续谱。经过优化 As<sub>2</sub>S<sub>3</sub>光子晶体光纤的拉锥直径后,其腰身直径为 55 μm,长度为 3 cm。在该拉锥光纤中实现了-20 dB 水平的光谱覆盖范围为 2 000~5 500 nm 的超连续光谱,实验结果和理论计算结果一致性较好。

**关键词:**非线性光学;超连续谱;飞秒脉冲;中红外;硫系玻璃;光子晶体光纤

中图分类号:O437

文献标识码:A

doi:10.3788/gzxb20225111.1106002

## 0 引言

当高峰功率的超短脉冲激光经过非线性介质时,在一系列非线性效应的共同作用下,超短脉冲频谱随时间变化得到展宽,即为超连续谱<sup>[1]</sup>(Supercontinuum, SC),其具有连续宽光谱、稳定可靠等优点,在生物医学、光谱检测、高精度光学频率测量等方面得到了广泛的应用<sup>[2-7]</sup>。目前超连续谱已经实现从可见光覆盖到中远红外波段。起先石英光纤由于成熟的制备工艺及低的光学损耗,被众多研究者用作实现超短脉冲展宽的非线性介质,且这种光纤的零色散波长(Zero Dispersion Wavelength, ZDW)通常与光纤激光器的波长匹配较好,有利于超连续谱整体器件的集成化。然而由于石英光纤的材料本征吸收,难以获得波长大于 2.5 μm 的中红外激光光源<sup>[8]</sup>。所以近十年来,中红外超连续谱所用的非线性光纤材料主要集中在硝酸盐、氟化物和硫系玻璃这几种多组分玻璃材料上<sup>[9-12]</sup>。硝酸盐光纤和氟化物光纤在大于 5 μm 波段传输损耗急剧上升,因此其超连续谱在中远红外波段很难得到展宽<sup>[13-14]</sup>。硫系玻璃具有如下几种突出的特征:大的线性折射率(2.0~3.5),极高的非线性折射率(2~20×10<sup>-18</sup> m<sup>2</sup>/W)、超快的非线性响应(<200 fs)、超低的双光子吸收(0.01~1×10<sup>-12</sup> m<sup>2</sup>/W)、独特的光敏特性和非常宽的红外波段透过光谱范围(1~20 μm),并且其光学性能随着材料组份的变化可连续调节<sup>[15]</sup>,引起了光学材料领域科研工作者的广泛关注<sup>[16-19]</sup>。近年来,基于硫系玻璃材料的光学器件,如光波导器件、硫系薄膜器件和硫系玻璃光纤等已经广泛地应用于生物和化学传感、光信息处理、中红外激光传能等领域<sup>[20-22]</sup>。目前随着以 S—基、Se—基、Te—基为主的硫系光纤制备工艺日渐成熟,上述硫系玻璃光纤已经具有较低损耗。因此,要想实现波长更长的中远红外超连续谱输出,硫系光纤为现阶段首选的非线性介质。泵浦源一般为商用的光纤激光器、光学参量放大器以及光学参量振荡器,围绕

**基金项目:**国家自然科学基金(Nos. 62005061,61905048,61935006,62005060,62090062),黑龙江省自然科学基金(No. LH2020F030),国家重点研发计划(No.2020YFA0607602),深圳科技项目(No.JCYJ20190808173619062),哈尔滨工程大学 111 项目(No.B13015)

**第一作者:**余琳(1978—),女,讲师,硕士,主要研究方向为多组分玻璃光纤器件。Email: lshe@hrbeu.edu.cn

**通讯作者:**王鹏飞(1977—),男,教授,博士,主要研究方向为中红外光纤激光器,多组分玻璃材料及器件。Email: pwang@hrbeu.edu.cn

**收稿日期:**2022-02-28;**录用日期:**2022-04-18

<http://www.photon.ac.cn>

中红外超连续谱的产生也已取得了诸多成果<sup>[23-26]</sup>。

将光纤进行拉锥可以有效增强光纤的色散调控能力,以及增大光纤的非线性系数,为中远红外超连续谱的性能提升提供了一种新的研究方案<sup>[27-29]</sup>。本文首先在实验方面,对 $\text{As}_2\text{S}_3$ 光子晶体光纤的设计、光纤预制棒的制备、光子晶体光纤制备、拉锥光纤的制备以及传输性能测试等方面进行了介绍,其次通过分步傅里叶变换求解非线性薛定谔方程结合量子噪声模型,分析模拟了超连续谱的产生机理。

## 1 硫系玻璃光子晶体光纤的结构设计

图1(a)为设计的硫系玻璃光子晶体光纤的横截面结构示意图。该光纤具有六边形结构,其中黑色区域为周期排列的空气孔阵列,白色区域为 $\text{As}_2\text{S}_3$ 基质材料玻璃。在该结构的光子晶体光纤中,纤芯部分对称两空气孔之间的距离为 $D_{\text{core}}$ ,包层中空气孔直径为 $d$ ,相邻空气孔之间的间隔为 $\Lambda$ 。图1(b)为利用有限元分析法计算的光纤中基模的模场分布,其光纤参数为 $D_{\text{core}}=10\ \mu\text{m}$ , $d=3.3\ \mu\text{m}$ , $\Lambda=7.2\ \mu\text{m}$ , $\text{As}_2\text{S}_3$ 的折射率为 $n_1=2.417@2.87\ \mu\text{m}$ ,从图中可以看出该光子晶体光纤的 $\text{LP}_{01}$ 基模很好地被限制在固态纤芯中。采用有限元分析软件COMSOL Multiphysics中的射频模块(Radio Frequency)进行数值模拟。

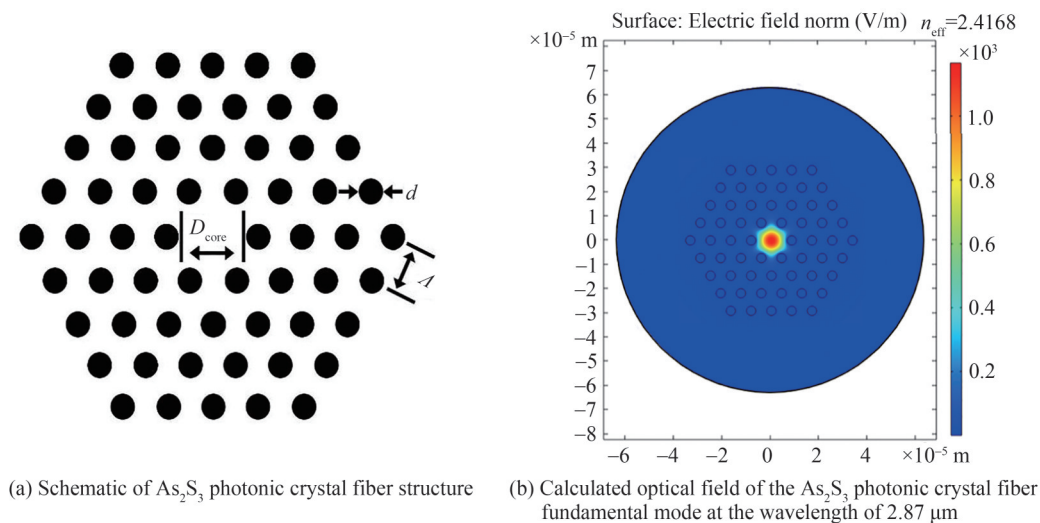


图1  $\text{As}_2\text{S}_3$ 光子晶体光纤横截面示意图及光场计算图

Fig. 1 Schematic of cross-section and calculated optical field of  $\text{As}_2\text{S}_3$  photonic crystal fiber

## 2 硫系玻璃光子晶体光纤及拉锥光纤的制备

硫系玻璃光子晶体光纤的制备方法主要包括堆栈法、铸造法、挤压法和机械钻孔法等<sup>[30-32]</sup>,其中,基于铸造法制备的硫系玻璃光子晶体光纤能够一次性得到低损耗的光纤预制棒,和其他制备方法相比,可以有效避免光纤预制棒在多次拉制过程中产生的析晶现象以及其他人为因素导致的损耗和缺陷,因此基于铸造法制备硫系玻璃光子晶体光纤得到了广泛关注。

### 2.1 硫系玻璃光子晶体光纤的制备

如图2所示,首先在高纯的石英玻璃管一端放入高纯的 $\text{As}_2\text{S}_3$ 玻璃材料,由高纯石英玻璃毛细管组成的六边形周期状排列的预制模具固定在玻璃管另一端,然后将石英玻璃管抽真空并密闭。加热装有 $\text{As}_2\text{S}_3$ 玻璃材料的一侧,通过精确控制加热温度以及适当的温度补偿,待 $\text{As}_2\text{S}_3$ 玻璃变为粘度较低的液体之后,小心地将玻璃管倾斜一定程度,使玻璃液完全注入预制模具的另一侧。经过冷却和精密退火等操作后,将密闭的石英玻璃管用金刚石切割刀切除,得到了带有石英毛细管模具的硫系玻璃预制棒前驱体,将带有硫系玻璃预制棒的前驱体连同石英模具一起置于浓度为48%的氢氟酸中5 min左右,再放入到氟化铵和氢氟酸的混合缓冲液(两种溶液体积比为20:1)里面浸泡10 min左右,待氢氟酸将预制棒前驱体中的石英毛细管模具彻底腐蚀后,得到了硫系玻璃光子晶体光纤预制棒。经过检测,光纤预制棒中未发现明显的气泡。

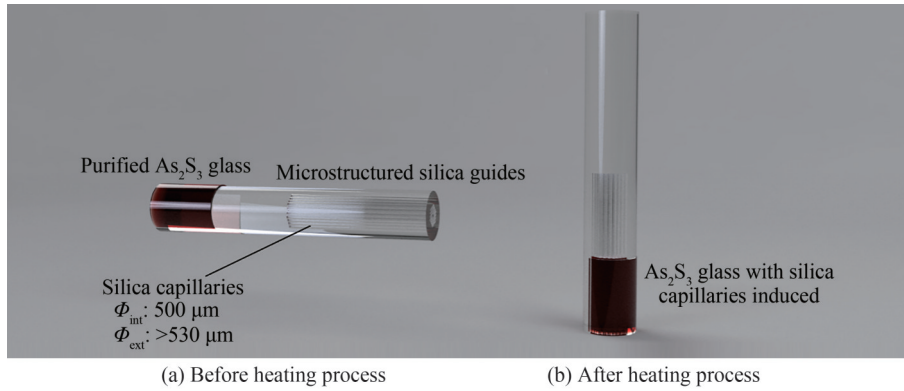


图2 As<sub>2</sub>S<sub>3</sub>光子晶体预制棒制备示意图

Fig. 2 Cross section image of As<sub>2</sub>S<sub>3</sub> photonic crystal fibre

将拉制好的预制棒固定在光纤拉丝塔中,升温至350℃,待光纤软化之后开始拉制光纤,光纤拉制温度控制在330℃,将送料速度调整为0.2 mm/min,拉制速度调整为5.26 m/min时,拉丝直径趋于稳定,光纤直径在±10 μm范围内波动,拉制后的裸纤直径(不含聚合物涂覆层约为130 μm),将制备好的光子晶体光纤进行聚醚酰亚胺(Polyetherimide, PEI)聚合物保护层的涂覆。其截面的显微镜图像见图3。

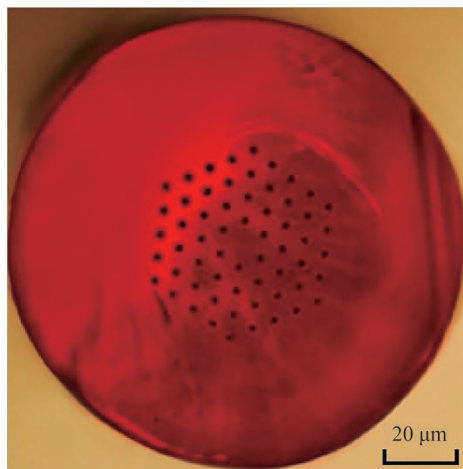


图3 As<sub>2</sub>S<sub>3</sub>光子晶体光纤横截面照片

Fig. 3 Cross section image of As<sub>2</sub>S<sub>3</sub> glass photonic crystal fibre

## 2.2 硫系玻璃光子晶体光纤拉锥的制备

目前,拉锥光纤主流的制备技术有三种,分别是火焰熔融加热拉锥法、二氧化碳激光加热熔融拉锥法和化学腐蚀法。

火焰熔融加热拉锥法设备如图4所示,将硫系玻璃光纤用三氯甲烷溶液浸泡15~20 min,剥除聚合物涂覆层,形成30 mm左右的裸纤,利用氢氧焰高温加热,此时将光纤向两边拉伸,最终在加热的区域得到拉锥光纤。拉锥过程中利用自制中红外超连续光源和中红外光纤光谱仪监测拉锥光纤的输出光谱变化。由于硫系玻璃的熔点较低,因此火焰的加热强度、加热位置、光纤拉伸速度、拉伸张力以及光纤的表面清洁度都会影响拉锥光纤的光学性能。以往研究发现,基于该方法制备的拉锥光纤在3 μm附近有较大的损耗,其主要原因是氢氧焰燃烧后生成的水在高温状态下使硫系玻璃中的羟基含量升高导致,此外,拉锥过程是在空气中进行的,没有气氛保护,也容易导致硫系玻璃氧化,使得拉锥光纤损耗增加。化学腐蚀法是利用氢氟酸等腐蚀性化学溶液对光纤进行腐蚀,以减小光纤直径,实现强倏逝场光传输的目的。化学腐蚀法通常具有操作简单、容易制备等优点,但是腐蚀性化学溶液对人体有害,容易对操作人员造成身体危害;化学腐蚀的速度由化学溶液的浓度决定,速度控制较为困难;且化学处理后拉锥光纤的表面较为粗糙,需要二次化学处理或者利用高温火焰,如氢氧焰,对腐蚀拉锥光纤的表面进行抛光处理,因此目前应用领域较为有限。

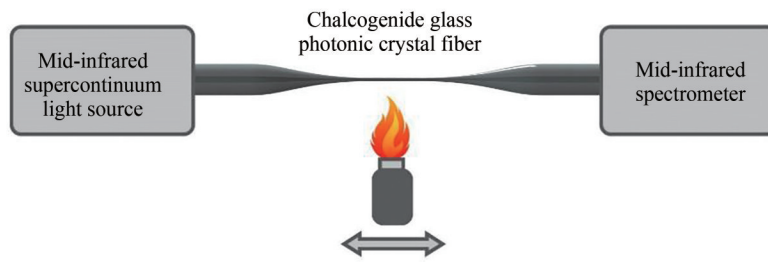


图4 火焰熔融加热拉锥法实验示意图

Fig. 4 Schematic of experimental setup of fibre tapering method using flame torch

二氧化碳激光拉锥技术能够对锥腰半径和锥腰长度等光纤参数进行精确控制,避免光纤在拉锥过程中容易受到外界环境影响等问题。实验中选用高频脉冲二氧化碳激光器作为加热源,激光光斑直径控制在 $50\sim 60\ \mu\text{m}$ 之间,激光最大输出功率可达 $10\ \text{W}$ ,频率为 $5\ \text{kHz}$ 。实验装置如图5所示,将长度约为 $5\ \text{cm}$ 的蓝宝石套管,套在剥除聚合物涂覆层的硫系玻璃光子晶体光纤外面,并在蓝宝石套管内通氩气,然后将硫系光纤两端置于步进电机上的光纤夹具固定,光纤一端接光源,另一端接光功率计。不断优化二氧化碳激光的扫描参数,以保证二氧化碳激光能够均匀加热蓝宝石管,待蓝宝石腔内温度达到硫系玻璃的软化温度后,步进电机按照设定长度和步长开始向两边移动至预设位置,完成光纤拉锥的拉锥过程。通过控制步进电机的步长、激光束扫描频率、扫描加热范围等参数,可以精确控制拉锥光纤形状。最后将拉锥光纤从蓝宝石套管中取出,光纤的两端放置在光纤夹具并固定在三维微调架上。

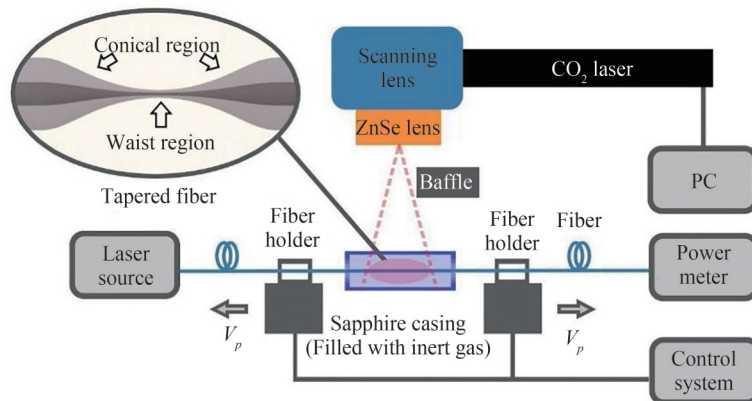


图5 二氧化碳激光加热拉锥法实验示意图

Fig.5 Schematic of experimental setup of  $\text{CO}_2$  laser tapering method

### 3 硫系光子晶体拉锥光纤超连续谱的产生及测试

以往的研究结果表明<sup>[23-25]</sup>,在反常色散区近零色散点泵浦有利于获得较宽的超连续谱输出。为了使泵浦光和光纤激光器波长匹配,通常会通过优化光纤的结构设计达到近零色散泵浦。光纤拉锥技术,可以通过改变光纤直径来调控光纤色散和非线性特性,增加光纤的非线性效应以及泵浦功率密度,其有着制备工艺简单、重复性好、耦合效率高等优点,作为超连续谱展宽的一种常见技术途径已经被广泛研究。

以拉锥 $\text{As}_2\text{S}_3$ 光子晶体光纤为研究对象,利用中红外光纤超连续光源研究拉锥光子晶体光纤的传输特性并测量拉锥光纤超连续谱输出特性,研究 $2.9\ \mu\text{m}$ 中红外波段飞秒光纤激光光源在不同泵浦功率下对超连续谱输出的影响。

#### 3.1 $2.9\ \mu\text{m}$ 波段氟化物光纤飞秒激光器的制备

该飞秒光纤激光器的泵源为 $1150\ \text{nm}$ 波段拉曼光纤激光器,其最大输出功率为 $10\ \text{W}$ ,利用长约 $3.7\ \text{m}$ 的双包层 $\text{Ho}^{3+}/\text{Pr}^{3+}$ 共掺( $\text{Ho}^{3+}:2\ \text{mol.}\%$ ,  $\text{Pr}^{3+}:0.2\ \text{mol.}\%$ )的ZBLAN( $\text{Zr}, \text{Ba}, \text{La}, \text{Al}, \text{Na}$ )双包层氟化物光

纤作为增益介质。在制备Ho<sup>3+</sup>/Pr<sup>3+</sup>共掺氟化物增益光纤过程中,通过精确控制化学原料的配料过程,即使用精确度为0.0001 g的精密电子天平控制化学药品的称重,来精确控制Pr<sup>3+</sup>和Ho<sup>3+</sup>的比例及含量。ZBLAN增益光纤的纤芯和内包层直径分别为12 μm和125 μm,光纤数值孔径(Numerical Aperture, NA)约为0.16。该飞秒激光器采用非线性偏振旋转(Nonlinear Polarization Rotation, NPR)的方法进行锁模:在2.9 μm环形腔光路中,1/2波片和1/4波片之间放置偏振相关的隔离器件。通过调整两个波片,对光路中的偏振态进行精确调控,在自相位调制和交叉相位调制效应下,两个不同幅度的正交分量光产生了不同的非线性相移,由于隔离器的存在,中央的高强度脉冲透过,低强度的脉冲得到衰减,以此产生具有自幅度调制作用的被动锁模机制,得到窄化的脉冲信号,最终在波长2.87 μm下实现了最高峰值功率可达25 kW,平均功率为193.4 mW,脉冲宽度为173 fs,单脉冲能量为4.3 nJ,重复频率为42 MHz的飞秒脉冲输出。

### 3.2 中红外波段传输谱测试

首先利用自制的中红外超连续光源测试了拉锥外径为55 μm,锥腰长度为3 cm的情况下,As<sub>2</sub>S<sub>3</sub>光子晶体光纤的中红外波段2~6.5 μm传输光谱,测试中使用的光纤长度为10 cm,可以看出光子晶体光纤最低损耗出现在4.6 μm波段,大约为6.1 dB/m,如图6所示,在光谱传输过程中,可以看到光纤中存在显著的杂质吸收峰,其中主要包括2.89 μm波长对应的O—H键吸收峰、4.1 μm波长对应的S—H键吸收峰、4.33 μm波长对应的CO<sub>2</sub>分子吸收峰和6.3 μm波长对应的H<sub>2</sub>O分子吸收峰。主要原因是光纤纤芯和包层玻璃材料本身存在一定含量的杂质,此外在光子晶体光纤拉制过程中,空气孔中存在少量的水和二氧化碳,在高温环境下会和硫系玻璃材料发生反应。除此之外,在拉锥过程中对光子晶体光纤的二次加热,进一步加剧了水和二氧化碳与光纤中硫系玻璃材料的反应,导致损耗加大。

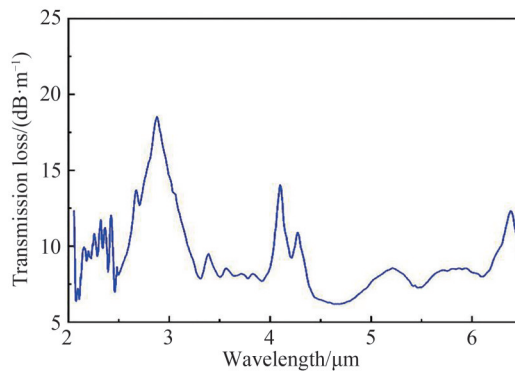


图6 不同拉锥直径下As<sub>2</sub>S<sub>3</sub>光子晶体光纤的中红外波段传输谱

Fig. 6 Optical transmission spectrum in mid-infrared region of As<sub>2</sub>S<sub>3</sub> photonic crystal fiber with different tapered diameters

超连续谱产生的实验装置如图7所示,中红外光纤飞秒脉冲激光经过扩束系统后,再经过CaF<sub>2</sub>透镜耦合到As<sub>2</sub>S<sub>3</sub>拉锥光纤中,其耦合效率约为45%,产生的超连续谱由傅里叶红外光谱仪(Fourier Transform

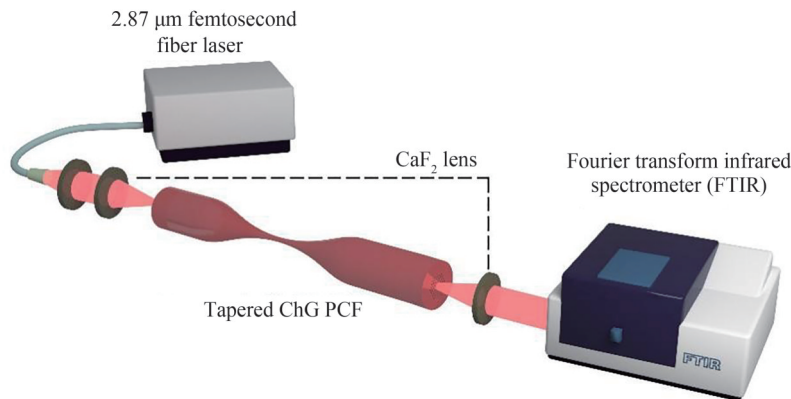


图7 拉锥As<sub>2</sub>S<sub>3</sub>光子晶体光纤的超连续谱测试实验装置

Fig. 7 Experimental setup for measuring supercontinuum output of tapered As<sub>2</sub>S<sub>3</sub> photonic crystal fiber

Infrared Spectrometer, FTIR)测量。

超连续光谱的测试结果如图8所示。随着泵浦功率由20 mW升至40 mW,经由拉锥的As<sub>2</sub>S<sub>3</sub>光子晶体光纤输出的超连续谱不断展宽,当泵浦功率达到40 mW时,超连续谱展宽达到最大,波长覆盖范围为1.5~6.2 μm。从图7可以看到,随着泵浦功率的增加,光谱逐渐向两侧展宽,其短波方向主要展宽机制为蓝移色散波的产生;长波方向的光谱展宽主要来由于自相位调制、孤子劈裂以及拉曼孤子自频移等非线性效应。此外,由于空气中CO<sub>2</sub>的吸收,导致该超连续谱在4.2 μm波长附近的光谱强度降低。可以看出,由于硫系光纤损耗的影响,光纤的光谱平坦性受到一定程度的劣化,分别在波长2.9 μm、4 μm处出现几个波谷。因此,为了获得较宽的平坦性好的超连续谱输出,后续测试中拟将实验装置置于惰性气体的密闭环境。当泵浦功率值达到50 mW时,发现泵浦激光会造成光纤端面的损伤,无法完成相应测试。这是由于目前实验采用空间泵浦方案,利用CaF<sub>2</sub>晶体透镜将中红外飞秒激光泵浦光聚焦到硫系光子晶体光纤的端面,容易造成光纤端面损伤,未来拟采用全光纤化方案,实现中红外波段超快飞秒激光器中的氟化物玻璃尾纤和硫系玻璃光子晶体光纤之间的低损耗异质光纤熔接,大大提高泵浦光耦合效率,实现中红外超连续谱的光谱展宽和输出功率的提升。

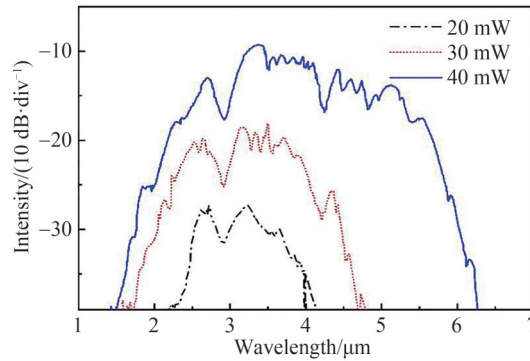


图8 不同泵浦功率下拉锥As<sub>2</sub>S<sub>3</sub>光子晶体光纤的超连续谱输出

Fig. 8 Measured supercontinuum output of tapered As<sub>2</sub>S<sub>3</sub> photonic crystal fiber at different input pump power

#### 4 超连续谱的模拟与实验结果对比分析

光子晶体光纤中超连续谱的产生是非线性效应以及群速度色散效应共同作用的结果。超短脉冲激光在光子晶体光纤中的脉冲展宽过程可以通过广义非线性薛定谔方程(Generalized Non-Linear Schrödinger Equation, GNLSE)进行描述,即

$$\frac{\partial A}{\partial z} + \frac{1}{2}\alpha A - \sum_{k \geq 2} \frac{i^{k+1}}{k!} \beta_k \frac{\partial^k A}{\partial T^k} = i\gamma \left( 1 + \frac{i}{\omega_0} \frac{\partial}{\partial T} \right) \left( A(z, T) \int_{-\infty}^{+\infty} R(T') |A(z, T - T')|^2 dT' \right) \quad (1)$$

式中, $A$ 为脉冲慢包络振幅, $z$ 为脉冲在光纤中的传输距离, $\alpha$ 为光纤损耗因子, $\beta_k$ 为脉冲高阶色散项, $\gamma$ 为非线性系数, $\omega_0$ 为脉冲的中心频率, $R(T)$ 为光纤基质材料的归一化拉曼响应函数, $T$ 为以脉冲包络(运动速度 $v_g$ )为参考的相对时间参数,与时间 $t$ 的变换关系为 $T = t - z/v_g$ 。式(1)可通过分步傅里叶法进行求解, $R(t)$ 计算公式为

$$R(t) = (1 - f_R) \cdot \delta(t) + f_R \cdot (\tau_1^2 + \tau_2^2) / \tau_1 \tau_2^2 \cdot e^{-t/\tau_2} \cdot \sin(t/\tau_1) \quad (2)$$

式中, $f_R$ 为拉曼响应系数, $\tau_1$ 、 $\tau_2$ 为材料的拉曼响应时间。根据As<sub>2</sub>S<sub>3</sub>玻璃材料的光学特性, $f_R = 0.18$ , $\tau_1$ 、 $\tau_2$ 分别为15.2 fs和230.5 fs<sup>[33]</sup>。

光纤的色散由玻璃的材料色散和光纤的波导色散共同决定,As<sub>2</sub>S<sub>3</sub>玻璃基质的折射率 $n$ 可通过Sellmeier公式表示为

$$n^2 = A + \frac{B_1 \lambda^2}{\lambda^2 - C_1} + \frac{B_2 \lambda^2}{\lambda^2 - C_2} + \frac{B_3 \lambda^2}{\lambda^2 - C_3} \quad (3)$$

通过测量玻璃在多个单波长处的折射率,并通过拟合得到式(3)中的系数如表1所示。

表1 As<sub>2</sub>S<sub>3</sub>玻璃折射率的Sellmeier公式拟合系数  
Table 1 Fitting coefficients of As<sub>2</sub>S<sub>3</sub> glass refractive index using the Sellmeier formula

A	B <sub>1</sub>	B <sub>2</sub>	B <sub>3</sub>	C <sub>1</sub>	C <sub>2</sub>	C <sub>3</sub>
1	1.898 4	1.922 3	0.876 5	0.022 5	0.062 5	0.122 5

根据光子晶体的结构参数和材料的折射率曲线,利用有限元分析法计算得到光子晶体光纤的有效折射率 $n_{\text{eff}}$ ,将其对波长做二阶偏微分可得到光纤的色散参量 $D$ 和二阶色散系数 $\beta_2$ ,即

$$D = -\frac{2\pi c}{\lambda^2} \beta_2 = -\frac{\lambda}{c} \frac{d^2 n_{\text{eff}}}{d\lambda^2} \quad (4)$$

用 $\beta_2$ 对 $\omega$ 做进一步微分计算可得到 $\beta_3 = d\beta_2/d\omega$ 及更高阶色散系数 $\beta_k$ 。

光纤的非线性系数是影响超连续谱展宽的另一个关键参数,其由光纤基质材料的非线性折射率 $n_2$ 和光纤的有效模场面积 $A_{\text{eff}}$ 确定,即

$$\gamma = \frac{2\pi}{\lambda} \frac{n_2}{A_{\text{eff}}} \quad (5)$$

$$A_{\text{eff}} = \frac{\left( \iint_{-\infty}^{\infty} |E(x, y)|^2 dx dy \right)^2}{\iint_{-\infty}^{\infty} |E(x, y)|^4 dx dy} \quad (6)$$

光纤的色散特性对光纤中的非线性效应及超连续谱展宽起着重要作用,采用有限元分析法对拉锥光纤的色散特性进行深入分析。光纤的总色散由材料和波导色散共同构成,材料色散是波导的固有特性,因此通过引入较高的波导色散可以实现总色散的调控。由图9可知,随着拉锥光纤锥区直径的减小,光纤的零色散波长逐渐朝着短波方向蓝移,特别当光纤直径减小至55  $\mu\text{m}$ 左右时,光纤的双零色散波长出现,且随直径的持续减小而蓝移,此时第一个零色散波长处在2.8  $\mu\text{m}$ 附近。这是由于拉锥光纤锥区直径减小,引起光纤的纤芯与包层结构的巨大变化,从而引入更多的波导色散。由于光纤的总色散为材料本身色散与波导色散之和,反常波导色散与正常的材料色散在零色散波长附近相互抵消,使得零色散波长逐渐向短波方向蓝移。该零色散波长与飞秒激光器中心波长完美匹配,在该波长泵浦下,四波混频与色散波产生的相位匹配条件易于满足,可以实现较宽光谱的超连续激光。

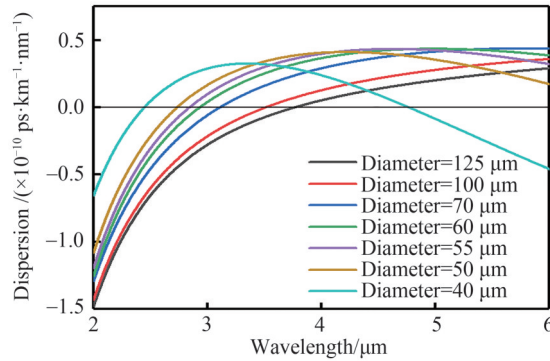


图9 不同拉锥直径下As<sub>2</sub>S<sub>3</sub>光子晶体光纤的色散分析曲线

Fig. 9 Dispersion analytic curves of As<sub>2</sub>S<sub>3</sub> photonic crystal fiber with different tapered diameters

在此基础上,采用分步傅里叶算法解非线性薛定谔方程,可以获得超短脉冲光谱在光纤中的演化过程。结合拉锥光纤在直径为55  $\mu\text{m}$ 时的模场,对应硫系光纤的非线性系数 $0.274 3 \text{ W}^{-1}/\text{m}$ 及色散相关参数,入射激光波长为2.87  $\mu\text{m}$ ,重复频率为42 MHz,脉冲宽度为173 fs,平均功率为40 mW,得到的激光脉冲在3 cm拉锥光纤中超连续光谱演化如图10所示。光纤的拉锥过程在改变光纤结构的同时,也对光纤的色散和非线性产生巨大影响。锥腰处比较小的尺寸使得光纤有效模场面积迅速减小,非线性系数急剧增大,激光在较短的传输距离内即可产生较强的非线性,从而实现光谱的极大展宽。

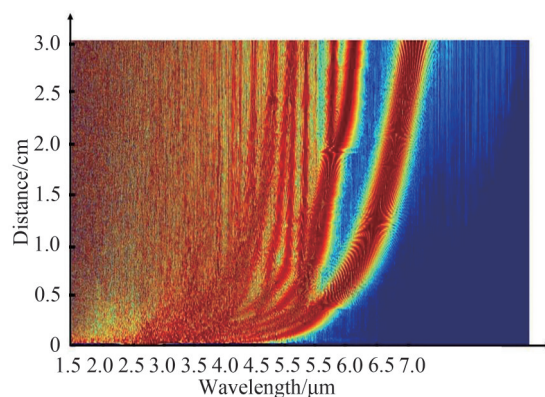


图10 超连续光谱在长度为3 cm  $\text{As}_2\text{S}_3$ 拉锥光子晶体光纤中的演化  
Fig. 10 Supercontinuum evolution in 3 cm-long tapered  $\text{As}_2\text{S}_3$  photonic crystal fiber

由图10可知,由于泵浦激光的中心波长处在拉锥光纤的反常色散区,此处的色散绝对值较小,通过近零反常色散泵浦结合锥区强非线性作用,光谱迅速展宽,由于高阶色散与拉曼效应共同作用,脉冲在0.5 cm的长度处产生分裂,所产生高阶孤子不断向长波方向移动,极大拓展了超连续光谱的长波边缘。展宽的光谱一部分扩展至短波对应的正常色散区,在自相位调制主导的非线性作用下,实现了较为平坦的展宽。长波方向的孤子辐射与短波的非孤子辐射共同使得光谱边缘向长短两个方向的迅速扩展。随后尽管在很短的传输距离范围内,在长波长区域,可以观察到孤子劈裂以及多重拉曼孤子自频移。受自制硫系玻璃光子晶体光纤损耗较高的影响,短波区域的超连续光谱强度偏低。理论模拟与实验结果的对比曲线如图11所示,可以看出,理论与实验结果总体趋势一致。特别考虑到光纤的损耗随波长的变化关系后,模拟与实验在光谱的强度分布方面吻合度较高。但是可以明显看出,模拟计算所获得的光谱的总体宽度,比实验得到的结果更窄,且在长波和短波边缘位置差别较大。这主要是因为理论计算过程中,理想的锥区结构不随光纤的长度变化;但实验中,由于拉锥过渡区的存在,锥腰处的几何尺寸随拉锥光纤的长度变化而渐变,从而影响了非线性与色散分布。再结合其他因素,包括色散计算、损耗测量及非线性系数等,最终导致理论计算结果与实验结果有一定的差异。

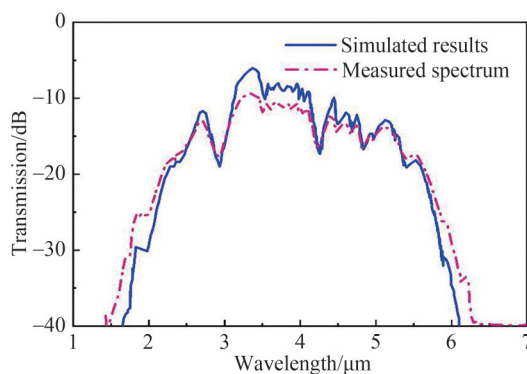


图11 模拟与实验获得光谱对比  
Fig.11 The comparison between experimental and simulated spectra

## 5 结论

本文自主制备了一种硫系玻璃光子晶体光纤,该光纤由组分为  $\text{As}_2\text{S}_3$  的纤芯和以呈六边形排列的空气孔的包层所组成。自制了中心波长为  $2.87 \mu\text{m}$  的中红外光纤飞秒激光器作为泵浦源,其重复频率为 42 MHz,脉冲宽度为 173 fs。利用二氧化碳激光器加热的方法将硫系玻璃光子晶体光纤加热拉锥,经过优化拉锥光纤直径后,利用腰身直径为  $55 \mu\text{m}$ ,长度为 3 cm 的硫系拉锥光纤实现了一 20 dB 水平的光谱覆盖范围为  $2000 \sim 5500 \text{ nm}$  的超连续光谱,实验测试结果和理论计算结果一致性较好。



## 参考文献

- [1] DUDLEY J M, GENTY G, COEN S. Supercontinuum generation in photonic crystal fiber [J]. *Reviews of Modern Physics*, 2006, 78(4): 1135.
- [2] PETERSEN C R, PRTLJAGA N, FARRIES M, et al. Mid-infrared multispectral tissue imaging using a chalcogenide fiber supercontinuum source [J]. *Optics Letters*, 2018, 43(5): 999-1002.
- [3] SCHLIESSER A, PICQUÉ N, HÄNSCH T W. Mid-infrared frequency combs [J]. *Nature Photonics*, 2012, 6(7): 440-449.
- [4] XIE Shangran, TOLSTIK N, TRAVERS J C, et al. Coherent octave-spanning mid-infrared supercontinuum generated in As<sub>2</sub>S<sub>3</sub>-silica double-nanospike waveguide pumped by femtosecond Cr: ZnS laser [J]. *Optics Express*, 2016, 24(11): 12406-12413.
- [5] BORONDICS F, JOSSENT M, SANDT C, et al. Supercontinuum-based Fourier transform infrared spectromicroscopy [J]. *Optica*, 2018, 5(4): 378-381.
- [6] ORSILA L, SAND J, NÄRHI M, et al. Supercontinuum generation as a signal amplifier [J]. *Optica*, 2015, 2(8): 757-764.
- [7] SAINI T S, TIWARI U K, SINHA R K. Design and analysis of dispersion engineered rib waveguides for on-chip mid-infrared supercontinuum [J]. *Journal of Lightwave Technology*, 2018, 36(10): 1993-1999.
- [8] SINGH N, XIN M, VERMEULEN D, et al. Octave-spanning coherent supercontinuum generation in silicon on insulator from 1.06  $\mu\text{m}$  to beyond 2.4  $\mu\text{m}$  [J]. *Light: Science & Applications*, 2018, 7(1): 17131-17131.
- [9] LI Zhenrui, JIA Zhixu, YAO Chuanfei, et al. 22.7 W mid-infrared supercontinuum generation in fluorotellurite fibers [J]. *Optics Letters*, 2020, 45(7): 1882-1885.
- [10] YANG Linyong, ZHANG Bin, HOU Jing. Research progress of supercontinuum fiber laser in high power 3~5 micron band [J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2021, 49(1): 0101001.  
杨林永, 张斌, 侯静. 高功率 3~5 微米波段超连续谱光纤激光研究进展 [J]. *中国激光*, 2021, 49(1): 0101001.
- [11] SUN Lihong, WANG Xunsi, ZHU Qingde, et al. Development of highly nonlinear chalcogenide glass and its theoretical research progress [J]. *Advances in Lasers and Optoelectronics*, 2016, 53(2): 1-9.  
孙礼红, 王训四, 祝清德, 等. 高非线性硫系玻璃开发及其理论研究进展 [J]. *激光与光电子学进展*, 2016, 53(2): 1-9.
- [12] YAN Bin, HUANG Tao, ZHANG Weiwang, et al. Generation of watt-level supercontinuum covering 2-6.5  $\mu\text{m}$  in an all-fiber structured infrared nonlinear transmission system [J]. *Optics Express*, 2021, 29(3): 4048-4057.
- [13] LI Zhenrui, YAO Chuanfei, JIA Zhixu, et al. Broadband supercontinuum generation from 600 to 5400 nm in a tapered fluorotellurite fiber pumped by a 2010 nm femtosecond fiber laser [J]. *Applied Physics Letters*, 2019, 115(9): 091103.
- [14] LIANG Sijing, XU Lin, FU Qiang, et al. 295-kW peak power picosecond pulses from a thulium-doped-fiber MOPA and the generation of watt-level > 2.5-octave supercontinuum extending up to 5  $\mu\text{m}$  [J]. *Optics Express*, 2018, 26(6): 6490-6498.
- [15] YANG Yan, CHEN Yunxiang, LIU Yonghua, et al. Control of the structure and properties of Ge-As-S chalcogenide glasses [J]. *Acta Physica Sinica*, 2016, 65(8): 087801.  
杨艳, 陈云翔, 刘永华, 等. Ge-As-S 硫系玻璃的结构与性能调控 [J]. *物理学报*, 2016, 65(8): 087801.
- [16] DAI Shixun, WANG Min, WANG Yingying, et al. Research progress of mid-infrared supercontinuum generation based on chalcogenide glass fiber [J]. *Advances in Lasers and Optoelectronics*, 2020, 57(7): 071603.  
戴世勋, 王敏, 王莹莹, 等. 基于硫系玻璃光纤的中红外超连续谱产生研究进展 [J]. *激光与光电子学进展*, 2020, 57(7): 071603.
- [17] SANGHERA J S, AGGARWAL I D, BUSSE L E, et al. Chalcogenide optical fibers target mid-IR applications [J]. *Laser Focus World*, 2005, 41(4): 83-87.
- [18] FENG Xian, YANG Zhiyong, SHI Jindan. Research progress on ultra-large mode field chalcogenide glass photonic crystal fibers [J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2021, 49(1): 0101006.  
冯宪, 杨志勇, 施进丹. 超大模场硫系玻璃光子晶体光纤研究进展 [J]. *中国激光*, 2021, 49(1): 0101006.
- [19] GUO Haitao, LU Min, TAO Guangming, et al. Research progress of mid-infrared luminescent rare earth doped chalcogenide glass [J]. *Journal of Silicate*, 2009, 37(12): 2150-2156.  
郭海涛, 陆敏, 陶光明, 等. 中红外发光稀土掺杂硫系玻璃的研究进展 [J]. *硅酸盐学报*, 2009, 37(12): 2150-2156.
- [20] ZHANG Hao, GUO Haitao, XU Yantao, et al. Research progress of chalcogenide glass fiber for infrared laser transmission [J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2021, 49(1): 0101007.  
张豪, 郭海涛, 许彦涛, 等. 用于红外激光传输的硫系玻璃光纤研究进展 [J]. *中国激光*, 2021, 49(1): 0101007.
- [21] WANG Xingfeng, YANG Jianfeng, YAN Xingtao, et al. Fabrication and performance testing of flexible chalcogenide glass infrared optical fiber imaging beam [J]. *Optical Precision Engineering*, 2017, 25(12): 3137-3144.  
王形锋, 杨建峰, 闫兴涛, 等. 柔性硫系玻璃红外光纤传像束的制备与性能测试 [J]. *光学精密工程*, 2017, 25(12): 3137-3144.

- [22] WANG Xiaomei, YANG Chenfeng, DAI Shixun, et al. Spectroscopic analysis of ethanol solution detection by tapered  $\text{Ge}_{15}\text{Sb}_{20}\text{Se}_{65}$  chalcogenide glass fiber [J]. *Acta Optics Sinica*, 2018, 38(6): 0606001.  
王晓美, 杨晨风, 戴世勋, 等. 拉锥  $\text{Ge}_{15}\text{Sb}_{20}\text{Se}_{65}$  硫系玻璃光纤对乙醇溶液检测的光谱分析研究[J]. *光学学报*, 2018, 38(6): 0606001.
- [23] CHENG Tonglei, NAGASAKA K, TUAN T H, et al. Mid-infrared supercontinuum generation spanning 2.0 to 15.1  $\mu\text{m}$  in a chalcogenide step-index fiber[J]. *Optics Letters*, 2016, 41(9): 2117-2120.
- [24] ZHAO Zheming, WU Bo, WANG Xunsi, et al. Mid-infrared supercontinuum covering 2.0-16  $\mu\text{m}$  in a low-loss telluride single-mode fiber[J]. *Laser & Photonics Reviews*, 2017, 11(2): 1700005.
- [25] YAO Jinmei, ZHANG Bin, HOU Jing. 2.3~9.5  $\mu\text{m}$  all-fiber mid-infrared supercontinuum light source [J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2020, 47(12): 1216002.  
姚金妹, 张斌, 侯静. 2.3~9.5  $\mu\text{m}$  全光纤中红外超连续谱光源[J]. *中国激光*, 2020, 47(12): 1216002.
- [26] WU Bo, ZHAO Zheming, WANG Xunsi, et al. Preparation and performance analysis of Te-based far-infrared chalcogenide glass fiber[J]. *Acta Physica Sinica*, 2017, 66(13): 127-133.  
吴波, 赵浙明, 王训四, 等. Te 基远红外硫系玻璃光纤的制备及性能分析[J]. *物理学报*, 2017, 66(13): 127-133.
- [27] WANG Yingying, DAI Shixun, LI Guangtao, et al. 1.4-7.2  $\mu\text{m}$  broadband supercontinuum generation in an As-S chalcogenide tapered fiber pumped in the normal dispersion regime[J]. *Optics Letters*, 2017, 42(17): 3458-3461.
- [28] HUDSON D D, ANTIPOV S, LI L, et al. Toward all-fiber supercontinuum spanning the mid-infrared [J]. *Optica*, 2017, 4(10): 1163-1166.
- [29] WANG Yingying, DAI Shixun, PENG Xuefeng, et al. Mid-infrared supercontinuum generation spanning from 1.9 to 5.7  $\mu\text{m}$  in a chalcogenide fiber taper with ultra-high NA[J]. *Infrared Physics & Technology*, 2018, 88: 102-105.
- [30] FREEMAN D, GRILLET C, LEE M W, et al. Chalcogenide glass photonic crystals[J]. *Photonics and Nanostructures-Fundamentals and Applications*, 2008, 6(1): 3-11.
- [31] DABAS B, SINHA R K. Dispersion characteristic of hexagonal and square lattice chalcogenide  $\text{As}_2\text{S}_3$  glass photonic crystal fiber[J]. *Optics Communications*, 2010, 283(7): 1331-1337.
- [32] LIU Shuo, TANG Junzhou, LIU Zijun, et al. Research on extrusion preparation and properties of low-loss chalcogenide glass fiber [J]. *Acta Optics Sinica*, 2016 (10): 39-46.  
刘硕, 唐俊州, 刘自军, 等. 低损耗硫系玻璃光纤的挤压制备及其性能研究[J]. *光学学报*, 2016 (10): 39-46.
- [33] GRANZOW N, STARK S P, SCHMIDT M A, et al. Supercontinuum generation in chalcogenide-silica step-index fibers [J]. *Optics Express*, 2011, 19(21): 21003-21010.

## Supercontinuum Generation from Tapered $\text{As}_2\text{S}_3$ Glass Photonic Crystal Fiber

SHE Lin<sup>1</sup>, XU Niannian<sup>1</sup>, YANG Peilong<sup>2,3</sup>, ZHANG Peiqing<sup>2,3</sup>, LI Zhenrui<sup>1</sup>,  
WANG Pengfei<sup>1</sup>, SUN Weimin<sup>1</sup>

(1 *Key Laboratory of In-Fiber Integrated Optics, Ministry Education of China, College of Physics and Optoelectronic Engineering, Harbin Engineering University, Harbin 150001, China*)

(2 *Laboratory of Infrared Material and Devices, The Research Institute of Advanced Technologies, Ningbo University, Ningbo, Zhejiang 315211, China*)

(3 *Key Laboratory of Photoelectric Materials and Devices of Zhejiang Province, Ningbo, Zhejiang 315211, China*)

**Abstract:** Chalcogenide glass material has an ultra-broad infrared transmission window, ultrafast nonlinear response time and ultra-high third-order nonlinearity. The  $\text{As}_2\text{S}_3$  material has lower cost, higher nonlinearity and a broader transmission span than other chalcogenide materials, which is a supporting factor for supercontinuum generation. In this paper, a chalcogenide  $\text{As}_2\text{S}_3$  glass based Photonic Crystal Fiber (PCF) with an  $\text{As}_2\text{S}_3$  glass fiber core and air-holes as the microstructure cladding was theoretically designed, and the optical performance of the  $\text{As}_2\text{S}_3$  glass PCF was studied using a commercial software of COMSOL Multiphysics. The proposed  $\text{As}_2\text{S}_3$  glass PCF preform was then experimentally fabricated using an improved molding method along with a chemical etching method. The  $\text{As}_2\text{S}_3$  glass PCF was drawn at the temperature of 350°C under the protection of dry  $\text{N}_2$  gas. The fabricated  $\text{As}_2\text{S}_3$  glass PCF has a solid hole in the center and its cladding consists of four layers of air holes arranged in regular hexagonal order. The solid core diameter of the fabricated  $\text{As}_2\text{S}_3$  glass photonic crystal fiber is 10  $\mu\text{m}$ , the diameter of the air-

holes is 3.3 μm and the air hole pitch between the centers of proximal holes is 7.2 μm. For the fiber tapering process, a micro-tapering system using a CO<sub>2</sub> laser along with a scanning mirror and two high precision translation stages was established, all of which are computer programming controlled. The use of a CO<sub>2</sub> laser to heat the fiber is advantageous over standard oxyhydrogen flame-tapering systems since it allows greater control over the tapering parameters, namely the size of the irradiated zone over the sapphire capillary, the heating rate and the exposure time, and also this avoids potential further pollution of OH<sup>-</sup> and H<sub>2</sub>O into the As<sub>2</sub>S<sub>3</sub> glass PCF. By mounting the As<sub>2</sub>S<sub>3</sub> glass PCF on computer-controlled translation stages gives programmable dynamic control over the fiber tension, as well as the ability to control the position of the tapered section with an accuracy of ±0.5 μm. Using this tapering system, taper regions as long as 5 cm were achieved with a tapering fiber diameter reduction of 56%. The diameter of the As<sub>2</sub>S<sub>3</sub> glass photonic crystal fiber can be tapered down to 40 μm based on the tapering method. To fabricate a pump source of supercontinuum generation, a customized mode-locked femtosecond (fs) fiber laser based on nonlinear polarization rotation effect in a home-made Ho<sup>3+</sup>/Pr<sup>3+</sup> codoped (Ho<sup>3+</sup>: 2 mol.%, Pr<sup>3+</sup>: 0.2 mol.%) ZBLAN glass fiber (the core diameter is 12 μm, the cladding diameter is 125 μm and the NA is 0.16) was achieved and it generates 173 fs pulses at the wavelength of 2.87 μm with an estimated peak power of 25 kW and a repetition frequency of 42 MHz. Then, the tapered chalcogenide glass photonic crystal fibers were pumped using the above ZBLAN fs fiber laser to generate the mid-infrared supercontinuum spectra. After optimizing the tapered diameters of the tapered As<sub>2</sub>S<sub>3</sub> glass photonic crystal fiber, the tapered As<sub>2</sub>S<sub>3</sub> glass photonic crystal fiber with a waist diameter of 55 μm and a waist length of 3 cm can generate a supercontinuum spectral coverage range of 2 000 nm to 5 500 nm at the loss level of -20 dB. A theoretical model based on the well-known generalized non-linear Schrödinger equation was also established for simulating the evolution of the proposed supercontinuum generation in the tapered As<sub>2</sub>S<sub>3</sub> glass photonic crystal fiber over the length of 3 cm. The experimental results have a good agreement with the theoretically calculated results. This investigation constitutes a major step toward developing an efficient chalcogenide glass photonic crystal fiber based broadband supercontinuum light source operating in the mid-infrared region.

**Key words:** Nonlinear optics; Supercontinuum; Femtosecond pulse; Mid-infrared; Chalcogenide glass; Photonic crystal fiber

**OCIS Codes:** 320.6629; 190.4370; 060.5295; 140.7090