

# 中红外玻璃光纤材料及拉曼激光光源研究进展(特邀)

焦亚东, 贾志旭, 郭晓慧, 张成昀, 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光源在前沿科学研究、空间光通信、医学诊断与治疗、环境污染监测和光电对抗等领域有着重要应用。拉曼光纤激光光源输出波长灵活, 原则上可以在光纤材料透过窗口范围内获得任意波长激光, 是实现中红外激光输出的一种重要手段。目前, 基于硫系玻璃光纤、氟化物玻璃光纤、碲酸盐玻璃光纤等中红外玻璃光纤材料, 已实现工作波长位于  $3.77\text{ }\mu\text{m}$  的拉曼光纤激光器、平均输出功率为  $3.7\text{ W}$  的  $2231\text{ nm}$  拉曼光纤激光器和波长调谐范围覆盖  $2\text{--}4.3\text{ }\mu\text{m}$  的拉曼孤子激光光源。近期, 笔者研究组制备出一种具有高热学和化学稳定性、高激光损伤阈值、大拉曼频移和高拉曼增益系数的氟碲酸盐玻璃光纤, 并利用其作为非线性介质, 先后实现了级联拉曼散射、级联拉曼光纤放大器、波长调谐范围覆盖  $1.96\text{--}2.82\text{ }\mu\text{m}$  的拉曼孤子激光以及波长为  $\sim 4\text{ }\mu\text{m}$  的红移色散波, 验证了氟碲酸盐玻璃光纤在中红外拉曼光纤激光光源研制方面的应用潜力。主要介绍了氟化物、硫化物及碲酸盐玻璃光纤材料的特点及相应的拉曼激光光源的相关研究进展, 并对其未来发展趋势进行了展望。

**关键词:**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: TN214 文献标志码: A DOI: 10.3788/IRLA20230228

## 0 引言

高功率中红外光纤激光光源在分子光谱学、光通讯、生物医疗、遥感、环境监测以及国防安全等领域有着重要的应用<sup>[1-8]</sup>。拉曼激光光源是实现中红外激光输出的一种主要技术手段, 其是利用光纤中的受激拉曼散射过程实现增益, 具有增益谱带宽、可实现级联运转等特点, 原则上可在中红外玻璃光纤材料透过窗口范围内实现任意波长激光输出<sup>[9]</sup>。此外, 基于光纤中拉曼孤子自频移效应产生宽调谐范围的拉曼孤子激光是另一种获得中红外波段激光光源的重要方式。当孤子激光(脉冲宽度为  $\sim 1\text{ ps}$  或更短)在具有负色散的中红外光纤中传输时, 在脉冲内拉曼散射效应作用下, 拉曼孤子激光脉冲的低频成分被放大, 孤子光谱向长波方向移动, 获得宽波长调谐范围的中红外拉曼孤子激光输出<sup>[9-10]</sup>。

作为拉曼光纤激光光源的重要组成部分之一, 增益光纤的基质材料选择以及光纤设计与制备对光源

的性能有着重要影响。石英、氟化物、硫系、碲酸盐等玻璃光纤是研制拉曼激光光源的几种主要增益介质。**表 1** 总结了几种典型玻璃材料的透过窗口和拉曼增益特性<sup>[9,11-12]</sup>。可以看出, 石英玻璃的红外透过窗口窄, 这限制了其在中红外波段拉曼激光光源研制方面的应用。而氟化物、硫化物和碲酸盐等玻璃光纤在中红外波段具有相对较宽的透过窗口和较大的拉曼增益系数, 是研制中红外拉曼激光光源的主要介质材料。

利用上述几种玻璃光纤作为增益介质, 研究者已报道了工作波长位于近红外和中红外波段的拉曼激光光源, 如**图 1** 所示<sup>[13-24]</sup>。在近红外波段拉曼激光光源研究方面, 利用低损耗石英光纤作为增益介质, 已实现平均功率千瓦量级和波长调谐范围覆盖  $1\text{--}2\text{ }\mu\text{m}$  的拉曼激光光源<sup>[13-17]</sup>。与之相比, 中红外波段拉曼激光光源输出功率较低, 其工作波长有待进一步向长波区拓展。在基于氟化物玻璃光纤的拉曼激光光源研

收稿日期: 2023-04-18; 修訂日期: 2023-05-09

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

作者简介: 焦亚东, 男, 博士生, 主要从事高功率中红外光纤激光光源方面的研究。

导师(通讯作者)简介: 秦冠仕, 男, 教授, 博士, 主要从事特种玻璃光纤与器件方面的研究。

表 1 几种典型近红外和中红外玻璃光纤材料的透过窗口及拉曼增益特性<sup>[9,11-12]</sup>Tab.1 Transparency windows and Raman gain characteristics of a few key near-infrared and mid-infrared glass optical fiber materials<sup>[9,11-12]</sup>

Glass	Transparency window/ μm	Peak Raman gain at 2.0 μm/ ×10 <sup>-13</sup> m·W <sup>-1</sup>	Peak Raman shift/ cm <sup>-1</sup>	Nominal Raman gain bandwidth/ cm <sup>-1</sup>
Silica	0.35-2	0.5	442	200
Fluoride	0.22-4.5	0.57-2.1	570	50
Arsenic sulfide (As <sub>2</sub> S <sub>3</sub> )	1.5-6.5	21.5-28.5	345	90
Arsenic selenide (As <sub>2</sub> Se <sub>3</sub> )	1.5-9.5	100-255	226	60
Tellurite	0.5-4.5	4.5-26	750	140

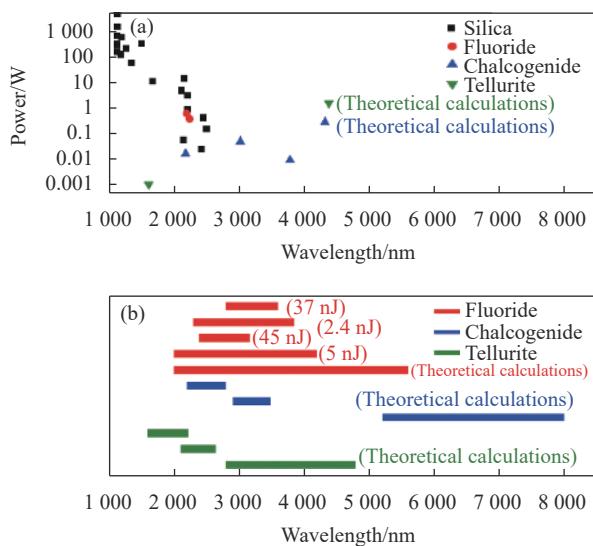
图 1 近年来近红外和中红外拉曼激光光源输出功率和输出波长情况<sup>[13-24]</sup>。(a) 拉曼光纤激光器;(b) 拉曼孤子激光光源

Fig.1 The output power and operating wavelength of near-infrared and mid-infrared Raman laser source in recent years<sup>[13-24]</sup>. (a) Raman fiber lasers; (b) Raman soliton laser source

究方面, Fortin 等研制出平均输出功率为 3.7 W、工作波长位于 2231 nm 的拉曼光纤激光器<sup>[18]</sup>。Tang 等利用拉曼孤子自频移技术研制出波长调谐范围覆盖 2~4.3 μm 的中红外拉曼孤子激光光源<sup>[19]</sup>。与氟化物玻璃相比, 硫系玻璃具有更宽的中红外透过窗口和更大的拉曼增益系数。Barnier 等利用硫化砷玻璃光纤作为增益介质, 搭建了基于嵌套光栅的两级级联拉曼激光器, 实现了工作波长位于 3.77 μm 的拉曼激光输出, 其平均功率为 9 mW、峰值功率为 112 mW<sup>[20]</sup>。与上述两种光纤相比, 磷酸盐玻璃光纤具有较大的拉曼频移、高的拉曼增益系数和较强的抗激光损伤能力, 利用其作为拉曼增益介质有望实现平均功率十瓦量级的 3~5 μm 拉曼光纤激光器和波长调谐范围覆盖

2.8~4.8 μm 的中红外拉曼孤子激光光源<sup>[21-22]</sup>。受当前红外玻璃光纤和超短脉冲泵浦激光光源性能参数的限制, 实验上获得的中红外拉曼激光光源的工作波长和调谐范围同理论计算结果还存在较大差距。探索新型中红外玻璃光纤材料, 突破低损耗中红外玻璃光纤制备技术, 是提高中红外拉曼激光光源输出功率、拓展其工作波长的关键。

近年来, 面向高功率中红外激光光源的应用需求, 笔者研究团队研制出一种具有宽红外透过窗口、高稳定性、高热机械品质的氟磷酸盐玻璃光纤。利用该光纤作为增益介质, 实现了光谱范围覆盖 1.5~3.7 μm 的级联拉曼散射并搭建了级联拉曼光纤放大器; 实现了波长调谐范围覆盖 1.98~2.82 μm 的拉曼孤子激光光源和工作波长为~4 μm 的红移色散波。文中主要介绍了几种中红外玻璃光纤材料的特点及相应的拉曼激光光源的研究进展情况, 并对其发展趋势进行了展望。

## 1 氟化物玻璃光纤材料及拉曼激光光源

氟化物玻璃光纤具有低的传输损耗、宽的红外低损耗传输窗口, 是目前研制中红外拉曼光纤激光器常用的增益介质之一。氟化物玻璃主要包含 ZrF<sub>4</sub> 基玻璃、InF<sub>3</sub> 基玻璃和 AlF<sub>3</sub> 基玻璃<sup>[25]</sup>, 其中以 ZBLAN(ZrF<sub>4</sub>-BaF<sub>2</sub>-LaF<sub>3</sub>-AlF<sub>3</sub>-NaF) 为代表的 ZrF<sub>4</sub> 基玻璃是目前研究最为成熟的氟化物玻璃。ZBLAN 光纤的理论损耗约为 0.001~0.010 dB/km, 比石英光纤低一个数量级, 因而得到了研究者的广泛关注<sup>[25]</sup>。目前, 美、法、日三国均实现了 ZBLAN 光纤商用化, 最低损耗为数十 dB/km。相较于 ZrF<sub>4</sub> 基光纤, InF<sub>3</sub> 基光纤和 AlF<sub>3</sub> 基光纤的研究开展较晚。InF<sub>3</sub> 基玻璃具有较低的声子能量 (~510 cm<sup>-1</sup>), 其红外截止带边>8 μm, 是获得>4 μm

波长激光输出的潜在增益材料<sup>[26~29]</sup>。AlF<sub>3</sub> 基玻璃红外截止带边为~6 μm, 其玻璃转变温度高、化学稳定性好, 有望用于实现高功率中红外激光稳定输出。近年来, 国内吉林大学、中国科学院上海光学精密机械研究所、哈尔滨工程大学等多个研究单位在氟化物玻璃光纤及应用方面取得了显著进展。其中, 吉林大学贾世杰等率先利用自制 Ho<sup>3+</sup>、Ho<sup>3+</sup>/Pr<sup>3+</sup>掺杂 AlF<sub>3</sub>/InF<sub>3</sub> 基光纤实现了 2868 nm 激光输出<sup>[30~31]</sup>, 并系统研究了 Er<sup>3+</sup>、Pr<sup>3+</sup>等稀土离子掺杂氟化物玻璃在 2.7~4 μm 波段的发光性质<sup>[32~33]</sup>。中国科学院上海光学精密机械研究所姜益光等在低损耗、高抗损氟化物玻璃光纤研制方面取得了较好进展, 成功制备出损耗为 50~140 dB/km 的 ZBLAN 多模光纤<sup>[23,34~35]</sup>。哈尔滨工程大学王顺宾等基于 Ho<sup>3+</sup>/Pr<sup>3+</sup>共掺 AlF<sub>3</sub> 基光纤获得了瓦量级的 2.9 μm 激光输出<sup>[36~37]</sup>, 利用 Nd<sup>3+</sup>敏化 Ho<sup>3+</sup>, 在 808 nm 激光泵浦下观察到了的 3.9 μm 发光增强现象<sup>[38~39]</sup>。

图 2 给出了三种典型氟化物玻璃材料的拉曼光谱<sup>[32]</sup>。ZrF<sub>4</sub> 基玻璃(如 ZBLAN 玻璃)的主拉曼频移峰位于 570~590 cm<sup>-1</sup>(17.1~17.7 THz)附近, 对应于 [ZrF<sub>6</sub>] 八面体、[ZrF<sub>8</sub>] 十二面体中 Zr-F 键的对称伸缩振动<sup>[40~41]</sup>。ZrF<sub>4</sub> 基玻璃的最大拉曼增益系数为~7×10<sup>-14</sup> m/W@2 μm, 高于石英玻璃<sup>[42~43]</sup>。InF<sub>3</sub> 基玻璃(如 IZGC(InF<sub>3</sub>-ZnF<sub>2</sub>-GaF<sub>3</sub>-BaF<sub>2</sub>-SrF<sub>2</sub>-CaF<sub>2</sub>) 玻璃)的主拉曼频移峰位于 510 cm<sup>-1</sup>(15.3 THz)附近<sup>[32]</sup>, AlF<sub>3</sub> 基玻璃(如 AYF(AlF<sub>3</sub>-MgF<sub>2</sub>-CaF<sub>2</sub>-SrF<sub>2</sub>-BaF<sub>2</sub>-YF<sub>3</sub>) 玻璃)

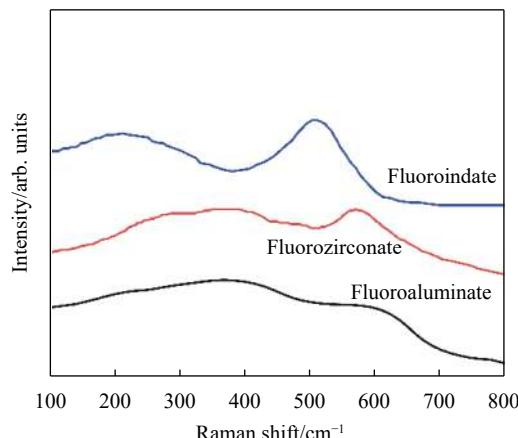


图 2 ZrF<sub>4</sub> 基、InF<sub>3</sub> 基和 AlF<sub>3</sub> 基玻璃的拉曼光谱<sup>[32]</sup>

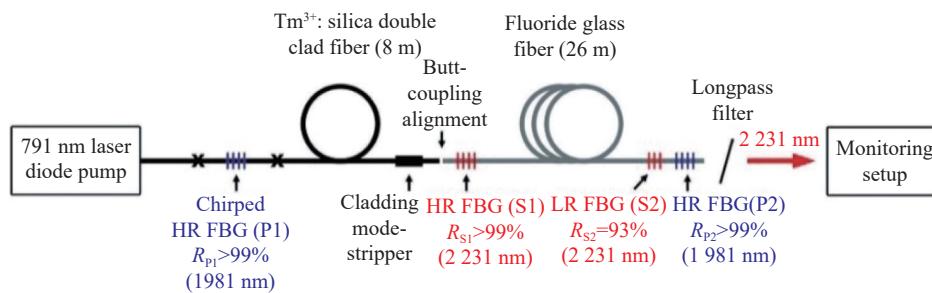
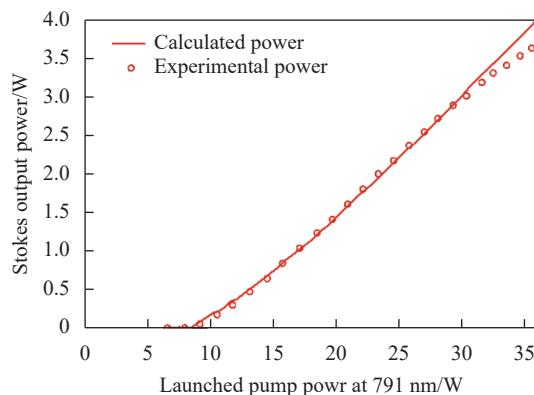
Fig.2 Raman spectra of fluorozirconate, fluoroindate and fluoroaluminate glasses<sup>[32]</sup>

的主拉曼频移峰位于 620 cm<sup>-1</sup>(18.6 THz)附近<sup>[32]</sup>。

在光纤中的级联拉曼散射现象研究方面: 2017 年, 日本丰田工业大学 Cheng 等首次在一段 10 m 长双折射 ZBLAN 光纤中观察到了近红外波段的四级级联拉曼散射<sup>[44]</sup>。实验中所使用的泵浦光源为一台工作波长为 1064 nm 的皮秒脉冲激光器, 其脉冲宽度为~15 ps, 重复频率为~80 MHz, 输出激光为线偏振光。当泵浦光平均功率达到~7 W 且振动方向平行于增益光纤慢轴时, 可观察到四级级联拉曼散射, 其中心波长分别位于 1135、1211、1300、1407 nm。当泵浦光振动方向平行于增益光纤快轴时, 只观察到三级级联拉曼散射, 这是由于光纤快轴的损耗大于慢轴的原因导致的<sup>[44]</sup>。

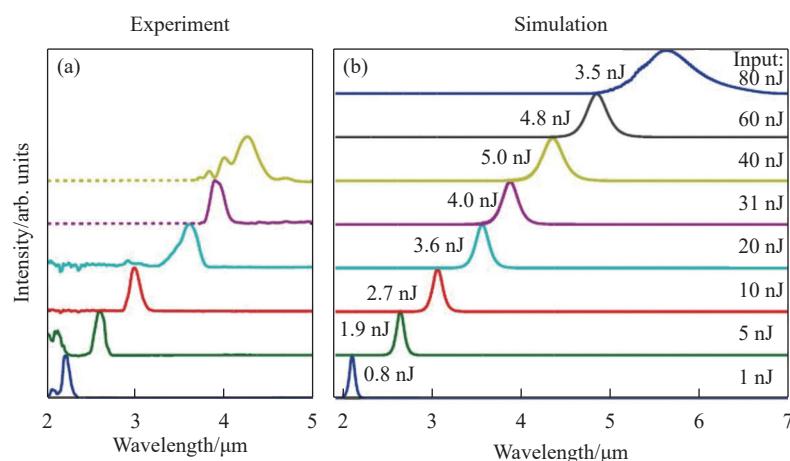
在中红外拉曼光纤激光器方面: 2011 年, 加拿大拉瓦尔大学 Fortin 等首次报道了基于氟化物玻璃光纤的拉曼激光器<sup>[45]</sup>, 其谐振腔由一对直接刻写在氟化物玻璃光纤两端的光纤布拉格光栅(FBG)构成。当 1940 nm 泵浦激光功率为 7 W、增益光纤长度为 29 m 时, 获得了中心波长为 2185 nm、平均功率为 0.58 W 的拉曼激光输出。随着泵浦功率的增大, 斜率效率由 29% 减小至 14%, 这可能是由于光纤内积累的热效应引起的输出端 FBG 反射波长移动以及腔内激光光谱宽化导致的<sup>[9,45]</sup>。随后, 该研究组进一步优化了激光器系统结构, 将 1981 nm 泵浦激光谐振腔和拉曼激光谐振腔嵌套在一起, 如图 3 所示, 该结构可以有效降低激光产生阈值, 提高激光器转换效率<sup>[18]</sup>。为了避免高功率运转时系统热效应带来的影响, 实验中还加入了帕尔贴冷却器以保证石英光纤与氟化物玻璃光纤间的耦合效率, 引入了带冷却装置的“V”型槽以抑制热效应导致的 FBG 反射波长红移。该激光器的最大平均输出功率为 3.66 W, 工作波长为 2231 nm。2231 nm 拉曼激光输出功率随 791 nm 泵浦光功率的变化规律如图 4 所示, 其斜率效率为 15%。

在中红外拉曼孤子激光光源研究方面: 2016 年, 美国康奈尔大学 Tang 等利用工作波长为 1.9 μm、脉冲宽度为 70 fs 的激光器泵浦一段长度为 2 m、芯径为 9 μm、零色散波长为 1.71 μm 的 InF<sub>3</sub> 基玻璃光纤, 获得了波长连续可调的中红外拉曼孤子激光输出, 其波长调谐范围覆盖 2.0~4.3 μm, 相应脉冲宽度为 60~140 fs, 峰值功率为 20~75 kW<sup>[19]</sup>。图 5 给出了基

图 3 基于氟化物玻璃光纤的嵌套腔结构 2231 nm 拉曼激光实验装置示意图<sup>[18]</sup>Fig.3 Experimental setup of nested cavity for 2231 nm Raman laser based on fluoride glass fiber<sup>[18]</sup>图 4 2231 nm 拉曼激光输出功率随泵浦光功率的变化规律<sup>[18]</sup>Fig.4 Output power of 2231 nm Raman laser versus launched pump power<sup>[18]</sup>

于  $\text{InF}_3$  基玻璃光纤的红移拉曼孤子激光实验结果和数值模拟计算结果。理论计算结果显示, 利用该方案有望将拉曼孤子激光的工作波长进一步红移至  $5.6 \mu\text{m}$ 。为进一步提高基于氟化物玻璃光纤的中红外拉曼孤子激光光源的输出功率, 2016 年, 加拿大拉瓦

尔大学 Duval 等利用工作波长位于中红外波段 ( $2.8 \mu\text{m}$ ) 的飞秒激光作为泵浦源, 获得了平均输出功率为  $2.1 \text{ W}$  的中红外拉曼孤子激光光源, 其波长调谐范围覆盖  $2.8\text{--}3.6 \mu\text{m}$ ,  $3.4 \mu\text{m}$  孤子激光的最大脉冲能量为  $37 \text{ nJ}$ , 相应的峰值功率估计可超过  $200 \text{ kW}$ <sup>[46]</sup>。2019 年, 德国慕尼黑大学 Nagl 等利用 Cr:ZnS 光参量振荡器产生的  $2.3 \mu\text{m}$  飞秒激光作为种子源, 纤芯直径为  $6.8 \mu\text{m}$  的 ZBLAN 光纤作为增益介质, 实现了调谐波长范围覆盖  $2.3\text{--}3.85 \mu\text{m}$  的中红外拉曼孤子激光, 其中在  $3.85 \mu\text{m}$  孤子激光的最大脉冲能量为  $2.4 \text{ nJ}$ , 脉冲宽度为  $70 \text{ fs}$ , 平均输出功率为  $112 \text{ mW}$ <sup>[47]</sup>。2021 年, 法国利摩日大学 Tiliouine 等利用大模场 ZBLAN 光纤作为增益介质, 实现了调谐波长范围覆盖  $2.39\text{--}3.17 \mu\text{m}$  的中红外拉曼孤子激光<sup>[48]</sup>, 其实验装置如图 6 所示, 实验中采用脉冲宽度为  $765 \text{ fs}$ 、脉冲能量为  $1 \mu\text{J}$  的  $1965 \text{ nm}$  激光泵浦一段大模场石英光纤和一段大模场 ZBLAN 光纤。泵浦脉冲首先在  $40 \text{ cm}$  长石英光纤

图 5 基于  $\text{InF}_3$  基玻璃光纤的可调谐拉曼孤子激光光谱<sup>[19]</sup>。(a) 实验测量结果; (b) 数值模拟计算结果Fig.5 Spectra of tunable Raman soliton based on  $\text{InF}_3$  glass fiber<sup>[19]</sup>. (a) Experimental measurement results; (b) Numerical simulation results

中产生中心波长频移至 2390 nm 的拉曼孤子, 随后该孤子同残余泵浦光直接耦合进入 3.5 m 长的 ZBLAN 光纤。拉曼孤子在 ZBLAN 光纤中实现进一步的波长

频移, 其中心波长最终频移至 3170 nm, 孤子光源的脉冲宽度为 165 fs, 脉冲能量为 45 nJ, 峰值功率为 273 kW, 如图 7 所示。

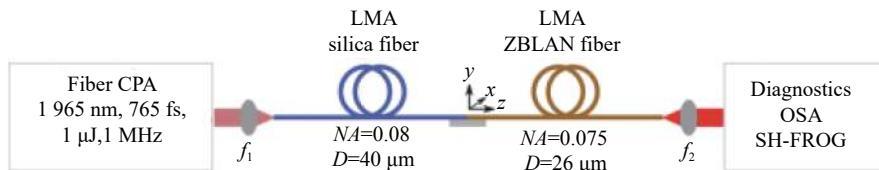


图 6 氟化物光纤中产生中红外拉曼孤子实验装置示意图<sup>[48]</sup>

Fig.6 Experimental setup for generation of mid-infrared Raman soliton in fluoride fiber<sup>[48]</sup>

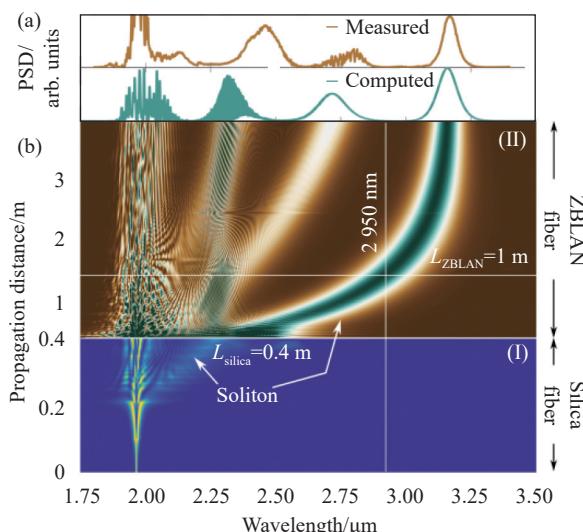


图 7 2.39~3.17 μm 拉曼孤子光谱图。(a) 实验测得和理论模拟结果对比; (b) 理论模拟孤子光谱沿 40 cm 长石英光纤和 3.5 m 长 ZBLAN 光纤的演化<sup>[48]</sup>

Fig.7 Spectra of Raman soliton from 2.39 to 3.17 μm. (a) Comparison between measured and computed spectral profiles; (b) Numerical simulation of the evolution of the spectrum along the 40 cm silica fiber followed by the 3.5 m ZBLAN fiber<sup>[48]</sup>

与 ZBLAN 和 InF<sub>3</sub> 基玻璃相比, AlF<sub>3</sub> 基玻璃具有更优异的抗潮解性能和抗激光损伤性能, 研究者常采用增加 AlF<sub>3</sub> 基玻璃光纤保护端帽的方式来实现提高中红外激光光源的输出功率和稳定性<sup>[49~50]</sup>。未来, 利用低损耗 AlF<sub>3</sub> 基玻璃光纤有望进一步提升中红外激光光源输出功率。

## 2 硫化物玻璃光纤材料及拉曼激光光源

与氟化物玻璃相比, 硫系玻璃具有更宽的红外透过窗口 (1~25 μm)。硫系玻璃是以硫 (S)、硒 (Se)、碲

(Te) 等硫系元素为主体, 结合一种或几种其他类金属元素 (如锗、砷、锑等) 形成的一种中红外玻璃材料, 其具有极低的声子能量 (300~450 cm<sup>-1</sup>)、高的折射率 (2.0~3.5)、高的非线性折射率 ((2~20)×10<sup>-18</sup> m<sup>2</sup>/W, 比石英玻璃高两三个数量级)、超短的非线性响应时间 (<200 fs)<sup>[51]</sup>。目前, 商品化的硫系玻璃光纤有 As<sub>2</sub>S<sub>3</sub> 和 As<sub>2</sub>Se<sub>3</sub> 光纤, 其最低损耗分别为 ~0.05 dB/m 和 0.20 dB/m, 其性能参数如表 2 所示<sup>[52~54]</sup>。中国科学院西安光学精密机械研究所、宁波大学、江苏师范大学等多个国内研究单位围绕低损耗硫系玻璃光纤开展了系列研究工作<sup>[55~60]</sup>。其中, 中国科学院西安光学精密机械研究所郭海涛研究团队采用反复蒸馏提纯和开放式动态蒸馏相结合的工艺成功制备出高纯 As-S 和高纯 Ge-Sb-Se 等多种硫系玻璃, 并发展了高温真空高速旋转预制棒成型和超窄光纤拉丝温控等关键技术, 成功制备出 As<sub>2</sub>S<sub>3</sub>、As<sub>2</sub>Se<sub>3</sub>、Ge-Sb-Se、Ge-Ga-S-Cds(CdI<sub>2</sub>) 等多种硫化物玻璃光纤, As<sub>2</sub>S<sub>3</sub> 光纤的最低损耗为 0.2 dB/m@3.8 μm, Ge-Sb-Se 光纤的最低损耗为 2.2 dB/m@7.0 μm<sup>[59~60]</sup>。

另外, 硫系玻璃还具有极大的拉曼增益系数, 其拉曼增益系数比石英玻璃高两三个数量级。典型 As<sub>2</sub>S<sub>3</sub> 玻璃的最大拉曼增益系数为 3.75×10<sup>-12</sup> m/W@2 μm, 峰值拉曼频移为 350 cm<sup>-1</sup>, 对应于 [As<sub>3</sub>S<sub>2</sub>] 正棱锥的对称伸缩振动。As<sub>2</sub>Se<sub>3</sub> 玻璃的最大拉曼增益系数为 2.55×10<sup>-11</sup> m/W@2 μm, 峰值拉曼频移为 250 cm<sup>-1</sup>, 对应于 As-Se 键的振动<sup>[61]</sup>。

在光纤中的级联拉曼散射现象研究方面: 2011 年, 法国宇航院 Duhant 等利用一段长度为 1.7 m 的 As-Se 微结构光纤作为非线性介质, 观察到了四级级联拉曼散射<sup>[62]</sup>。实验中泵浦光源为工作波长位于

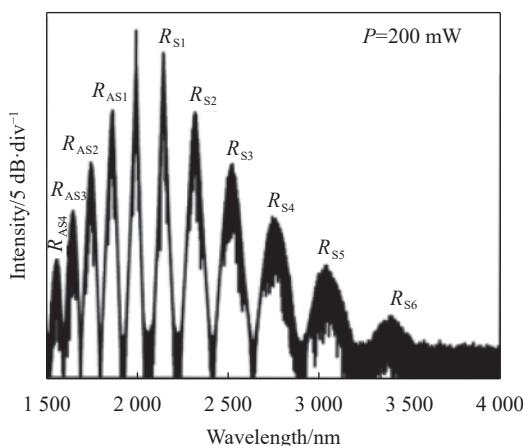
表 2 典型商用硫化物玻璃光纤产品性能参数<sup>[52-54]</sup>Tab.2 Performance parameters of typical commercial chalcogenide optical fibers<sup>[52-54]</sup>

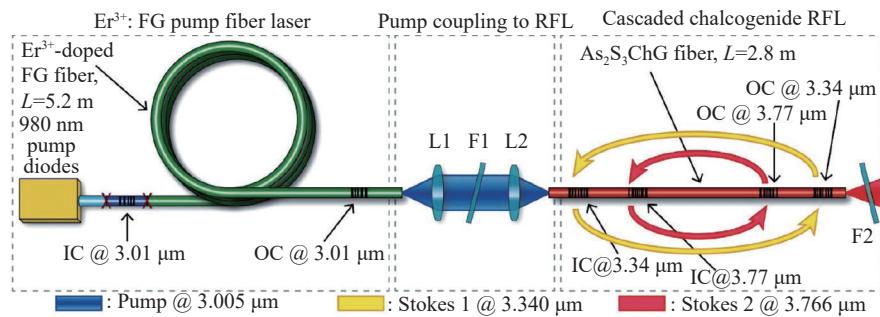
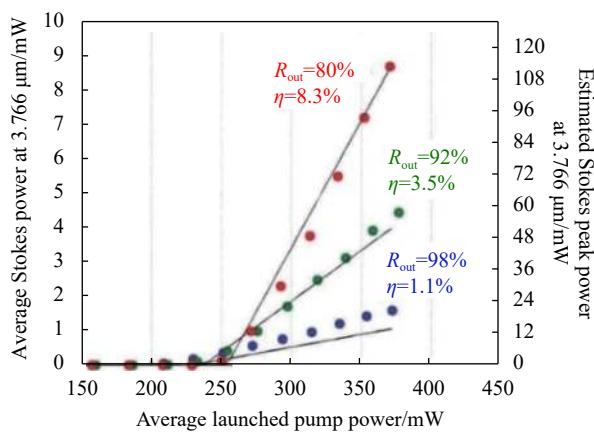
Index	CoreActive		IRFlex		Art Photonics	
P/N	IRT-SU	IRT-SE	IRF-S	IRF-Se	IRF-SeG	CIR
Core/clad	As <sub>2</sub> S <sub>3</sub>	As <sub>2</sub> Se <sub>3</sub>	As <sub>2</sub> S <sub>3</sub>	As <sub>2</sub> Se <sub>3</sub>	As <sub>2</sub> Se <sub>3</sub> /GeAs <sub>2</sub> S <sub>3</sub>	As <sub>2</sub> S <sub>3</sub>
Transmission range/μm	2-6	2-9	1.5-6.5	1.5-10	1.5-9.3	1.1-6.5
Core refractive index	2.4	2.7	2.4	2.7	2.7	2.42
Numerical aperture	0.25	0.26	0.28-0.30	0.275-0.350	0.76	0.25-0.30
Typical loss/dB·m <sup>-1</sup>	0.15@2.7 μm 0.70@4.0 μm	0.20@6 μm 0.50@4.55 μm	0.05@2.8 μm	0.21@2.59 μm	0.32@2 μm	0.20@2.5-4 μm
Tensile strength/kpsi	>15	>15	>15	>15	-	>70

1 995 nm 的纳秒光纤激光器, 当其峰值功率达到 11 W 时, 产生了波长位于 2 450 nm 的四级斯托克斯光。2018 年, 日本丰田工业大学 Cheng 等首次报道了基于硫化物玻璃光纤的八级级联拉曼散射, 这是在非石英光纤中获得的级联数目最多的拉曼散射现象<sup>[63]</sup>。实验中所选用的增益光纤为一段基于 As<sub>38</sub>S<sub>62</sub> 和 As<sub>36</sub>S<sub>64</sub> 玻璃的 As-S 光纤, 其长度为 16 m, 泵浦光源为工作波长为 1 545 nm 的纳秒光纤激光器, 其脉冲宽度为~4.1 ns, 重复频率为~25 kHz。当平均泵浦功率为 100 mW 时, 获得了波长位于~2 698 nm 的八级斯托克斯光。2021 年, 东北大学 Wang 等采用脉冲宽度为~20 ns、重复频率为~10 kHz 的 2 μm 纳秒激光泵浦一段长度为 8 m、纤芯直径为~5.0 μm 的自制 As<sub>2</sub>S<sub>5</sub> 玻璃光纤, 获得了六级级联拉曼散射, 其实验结果如图 8 所示, 最长输出波长位于 3.43 μm<sup>[64]</sup>。

在中红外拉曼光纤激光器研究方面: 2006 年, 澳大利亚悉尼大学 Jackson 等首次报道了基于 As<sub>2</sub>S<sub>3</sub> 玻

璃光纤的拉曼激光器, 其输出波长依次为 2 062、2 102、2 166 nm, 对应的输出功率分别为 0.64、0.2、0.016 W<sup>[65]</sup>。该研究工作中的谐振腔由一个宽带反射镜和反射率为 22% 的光纤端面构成。随着中红外 FBG 制备技术和~3 μm 波段泵浦源(例如掺铒氟化物光纤激光器)的发展, 中红外拉曼光纤激光器的性能也取得了较大提升。2012 年, 加拿大拉瓦尔大学的 Bernier 等通过相位掩膜法成功制备出硫化物玻璃光纤光栅<sup>[66]</sup>。次年, 该团队报道了基于硫化物玻璃光纤的第一台工作波长>3 μm 的拉曼激光器<sup>[67]</sup>。实验中所选用的泵浦光源为一台输出波长位于 3.005 μm 的准连续掺 Er<sup>3+</sup>氟化物玻璃光纤激光器, 其脉冲宽度为 5 ms, 重复频率为 20 Hz, 所选用的增益介质为一段长度为 3 m、芯径为 4 μm 的 As<sub>2</sub>S<sub>3</sub> 玻璃光纤。实验中, 谐振腔由直接刻写在 As<sub>2</sub>S<sub>3</sub> 玻璃光纤两端的 FBG 构成, 其反射率分别为>99% 和 63%, 获得的拉曼激光工作波长为 3.34 μm, 平均输出功率为 47 mW, 相应的峰值功率为 0.6 W, 斜率效率为 39%。2014 年, Bernier 等进一步实现了工作波长位于 3.77 μm 的拉曼激光输出, 这是迄今为止在拉曼光纤激光器中获得的最长波长, 其实验装置如图 9 所示<sup>[20]</sup>, 泵浦源为输出波长位于 3.005 μm 的准连续掺 Er<sup>3+</sup>氟化物玻璃光纤激光器, 增益介质为一段 2.8 m 长 As<sub>2</sub>S<sub>3</sub> 玻璃光纤, 谐振腔由两对嵌套刻写在平均功率为 9 mW、峰值功率为 112 mW 的增益光纤两端的 FBG 构成。当泵浦光功率为 3.9 W、输出端 FBG 反射率为 80% 时, 获得了 3.766 μm 拉曼激光输出, 激光斜率效率为 8.3%, 如图 10 所示。为了获得更长波长的拉曼光纤激光器, 2019 年, 宁波大学 Peng 等理论计算了基于硫化物玻璃光纤的 4.3 μm 拉曼激光器性能, 结果表明, 通过优化光纤长度和 FBG

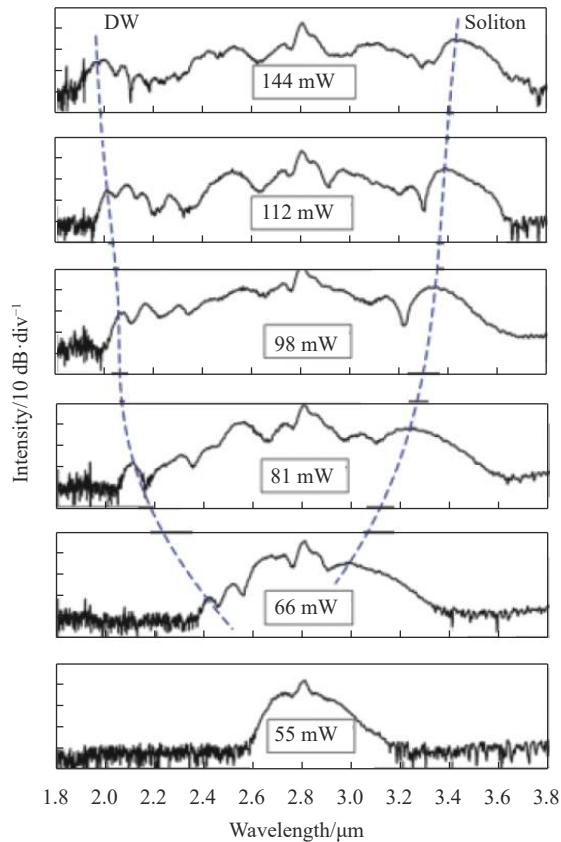
图 8 长度为 8 m 的 As-S 玻璃光纤的级联拉曼频移光谱<sup>[64]</sup>Fig.8 Cascaded Raman shift spectra of 8 m long As-S optical fiber<sup>[64]</sup>

图 9 3.77 μm  $\text{As}_2\text{S}_3$  级联拉曼光纤激光器的实验装置示意图<sup>[20]</sup>Fig.9 Experimental setup of 3.77  $\mu\text{m}$   $\text{As}_2\text{S}_3$ -based cascaded RFL<sup>[20]</sup>图 10 当输出端级联斯托克斯光栅的峰值反射率为 98%、92% 和 80% 时, 3.77  $\mu\text{m}$  拉曼激光的输出功率随泵浦光功率的变化规律<sup>[20]</sup>Fig.10 The output power of 3.77  $\mu\text{m}$  Raman laser versus launched pump power for output cascaded Stokes FBG with peak reflectivity of 98%, 92%, and 80%<sup>[20]</sup>

反射率有望获得输出功率为 0.269 W 的 4.3  $\mu\text{m}$  拉曼激光<sup>[68]</sup>, 但目前作为泵浦光源的~3.9  $\mu\text{m}$  掺钛氟化物光纤激光器研制尚不成熟, >4.0  $\mu\text{m}$  的拉曼激光器尚未见报道。

在中红外拉曼孤子激光光源的研究方面:由于传统的阶跃型硫系玻璃光纤的零色散波长一般大于 2  $\mu\text{m}$  ( $\text{As}_2\text{S}_3$  和  $\text{As}_2\text{Se}_3$  玻璃材料的零色散波长分别为 4.89 和 7.22  $\mu\text{m}$ ), 为了获得基于硫系玻璃光纤的中红外拉曼孤子激光光源, 研究者通常采用零色散波长位于 2  $\mu\text{m}$  附近的硫系微结构光纤作为增益介质。2014 年, 日本丰田工业大学 Cheng 等利用拉锥  $\text{As}_2\text{S}_5$  微结构光纤(零色散波长由 2.02  $\mu\text{m}$  逐渐移动至 1.61  $\mu\text{m}$ )作为增益介质, 利用脉冲宽度为 200 fs、重复频率为 80 MHz 的 1 900 nm 激光作为泵浦光源, 获得

了调谐波长范围覆盖 2.206~2.800  $\mu\text{m}$  的拉曼孤子激光光源<sup>[69]</sup>。随后, 该研究组利用  $\text{AsSe}_2$ - $\text{As}_2\text{S}_5$  微结构光纤作为增益介质, 利用脉冲宽度为~200 fs、重复频率为 80 MHz 的 2.8  $\mu\text{m}$  激光作为泵浦光源, 获得了调谐波长范围覆盖 2.916~3.489  $\mu\text{m}$  的中红外拉曼孤子激光光源, 实验结果如图 11 所示<sup>[70]</sup>。实验中所使用

图 11 (a)  $\text{AsSe}_2$ - $\text{As}_2\text{S}_5$  微结构光纤截面照片<sup>[70]</sup>; (b)  $\text{AsSe}_2$ - $\text{As}_2\text{S}_5$  微结构光纤的基模有效折射率(黑线)和群速度色散曲线(蓝线)Fig.11 (a) Cross section of the  $\text{AsSe}_2$ - $\text{As}_2\text{S}_5$  MOF<sup>[70]</sup>; (b) Black line is the fundamental mode refractive index and blue line is the calculated group velocity dispersion of the  $\text{AsSe}_2$ - $\text{As}_2\text{S}_5$  MOF

的  $\text{AsSe}_2\text{-As}_2\text{S}_5$  微结构光纤的截面如图 12(a) 所示, 色散曲线如图 12(b) 所示, 其零色散波长位于  $2.759 \mu\text{m}$ 。最终获得的中红外拉曼孤子激光光源功率较低, 仅为毫瓦量级。2022 年, 电子科技大学 Hou 等分别对  $4.1 \mu\text{m}$

和  $5.2 \mu\text{m}$  激光泵浦条件下  $\text{AsSe}_2\text{-As}_2\text{S}_5$  光纤产生宽调谐拉曼孤子激光进行了数值模拟<sup>[23]</sup>。计算结果显示, 利用硫系玻璃光纤作为非线性介质, 有望获得工作波长  $>8 \mu\text{m}$  的拉曼孤子激光光源, 如图 13 所示。

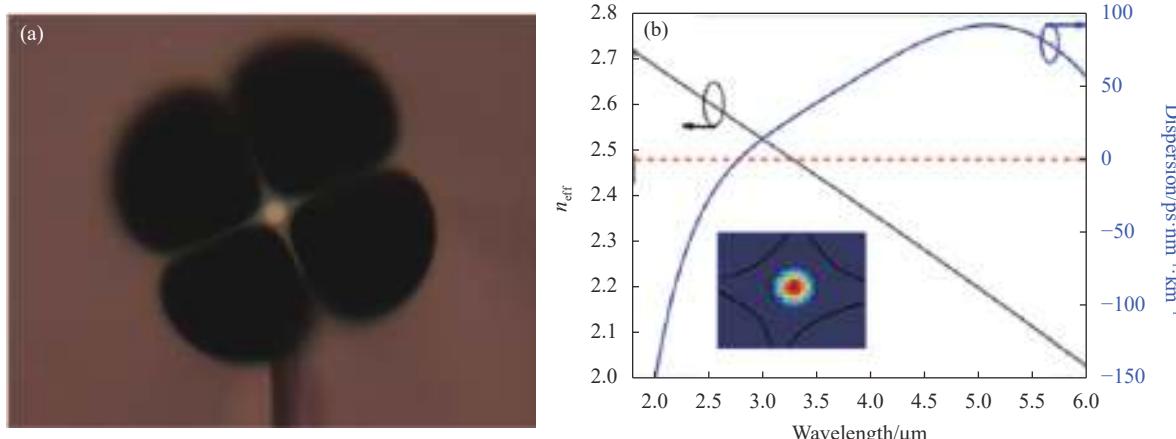


图 12 在  $\sim 2.8 \mu\text{m}$  泵浦光源的平均功率分别为 55、66、81、98、112、144 mW 条件下的中红外孤子自频移和色散波光谱<sup>[70]</sup>

Fig.12 MID-IR SSFS and DW spectra at the pump wavelength of  $\sim 2.8 \mu\text{m}$  with the average pump powers of 55, 66, 81, 98, 112, and 144 mW<sup>[70]</sup>

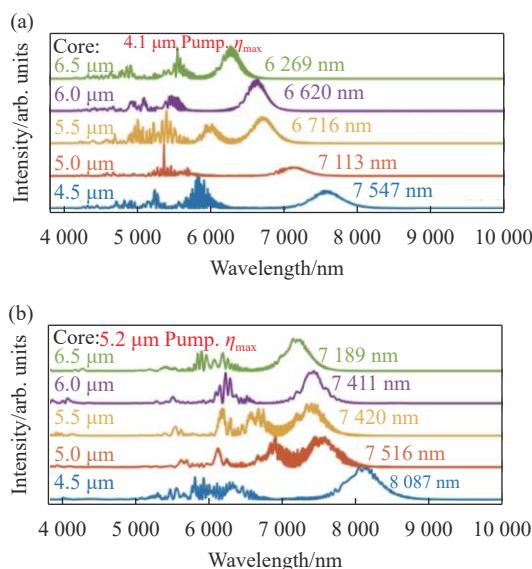


图 13 计算得纤芯直径  $4.5\text{~}6.5 \mu\text{m}$  的  $\text{AsSe}_2\text{-As}_2\text{S}_5$  光纤的输出光谱<sup>[23]</sup>。

(a) 泵浦波长  $4.1 \mu\text{m}$ ; (b) 泵浦波长  $5.2 \mu\text{m}$

Fig.13 The calculated output spectra of the  $\text{AsSe}_2\text{-As}_2\text{S}_5$  fiber with a core diameter ranging from  $4.5 \mu\text{m}$  to  $6.5 \mu\text{m}$ <sup>[23]</sup>. (a) Use the  $4.1 \mu\text{m}$  pump; (b) Use the  $5.2 \mu\text{m}$  pump

目前已报道基于硫系玻璃光纤的拉曼激光光源均采用  $\text{As}_2\text{S}_3$  或  $\text{As}_2\text{Se}_3$  玻璃光纤作为增益介质。由于 As 元素毒性较高, 在光纤制备、测试及使用等过程中, 该类玻璃光纤存在一定安全隐患。因此, 新型

无 As 环保型硫化物玻璃光纤材料(如 Ge-Sb-Se 系统硫化物玻璃等)的探索及其在中红外拉曼激光光源方面的应用成为该领域的重要研究方向之一。此外, 硫系玻璃光纤的激光损伤阈值较低, 严重限制了相关激光输出功率的进一步提升。探索稳定性好、抗激光损伤能力强的新型红外玻璃光纤材料, 对推进高功率中红外拉曼激光光源的发展及应用具有重要意义。

### 3 磷酸盐玻璃光纤材料及拉曼激光光源

与氟化物和硫系物玻璃相比, 磷酸盐玻璃具有稳定性好、玻璃转变温度高等特点, 是另一种研制中红外拉曼激光光源的光纤基质材料。磷酸盐玻璃是以  $\text{TeO}_2$  为主要材料, 结合多种其他组分(如  $\text{Na}_2\text{O}$ 、 $\text{ZnO}$ 、 $\text{BaO}$ 、 $\text{Bi}_2\text{O}_3$  等碱金属氧化物)形成的氧化物玻璃。磷酸盐玻璃的声子能量约为  $640\text{~}790 \text{ cm}^{-1}$ , 红外透过窗口覆盖  $0.4\text{~}6.5 \mu\text{m}$ <sup>[71\text{~}72]</sup>。此外, 磷酸盐玻璃还具有较高的非线性折射率( $2\times 10^{-18} \text{ m}^2/\text{W}$ )、良好的抗析晶能力、强的抗潮解能力和抗腐蚀性能。近年来, 研究者通过控制反应气氛和引入氟化物等方式来去除磷酸盐玻璃中的羟基以提升磷酸盐玻璃光纤的质量<sup>[73\text{~}74]</sup>。目前, 利用磷酸盐玻璃光纤作为增益介质, 已实现高功率稀土掺杂中红外光纤激光器、中红外超连续激光

光源等<sup>[74~76]</sup>。

此外, 硼酸盐玻璃具有相比于氟化物玻璃和硫化物玻璃更大的拉曼频移, 其拉曼增益系数比氟化物玻璃高一个数量级<sup>[9]</sup>。硼酸盐玻璃通常具有多个拉曼频移峰, 其中, 位于  $750\text{ cm}^{-1}$  附近的主拉曼频移峰对应于  $[\text{TeO}_3]$  三方锥、 $[\text{TeO}_{3+1}]$  多面体中非桥氧 Te-O 或 Te=O 键的对称伸缩振动, 位于  $665\text{ cm}^{-1}$  附近的拉曼频移峰对应于  $[\text{TeO}_4]$  三角双锥的反对称伸缩振动, 位于  $400\text{ cm}^{-1}$  附近的拉曼频移峰对应于  $[\text{TeO}_3]$  三方锥、 $[\text{TeO}_{3+1}]$  多面体以及  $[\text{TeO}_4]$  三角双锥中桥氧 Te-O-Te 键的对称伸缩振动<sup>[77~78]</sup>。图 14 给出了 TBZN ( $\text{TeO}_2\text{-Bi}_2\text{O}_3\text{-ZnO-Na}_2\text{O}$ ) 玻璃的拉曼增益光谱, 其峰值拉曼频移位于  $\sim 740\text{ cm}^{-1}$  ( $\sim 22\text{ THz}$ ), 相应的拉曼增益系数约为  $3.8 \times 10^{-12}\text{ m/W@798 nm}$ , 比石英和氟化物玻璃高一个数量级<sup>[79]</sup>。硼酸盐玻璃在  $\sim 1\mu\text{m}$  皮秒激光泵浦下的损伤阈值为  $100\text{ GW}\cdot\text{cm}^{-2}$ , 远大于硫化物玻璃<sup>[9,41]</sup>。

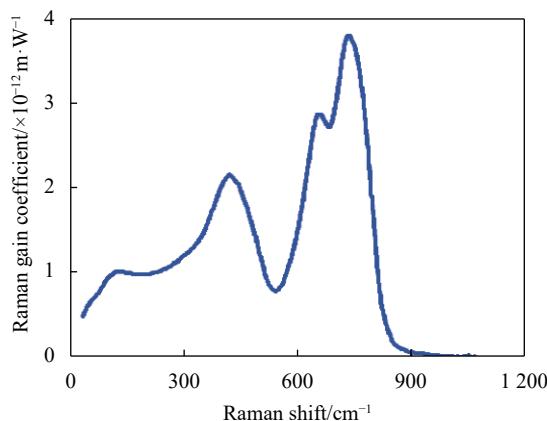


图 14 TBZN 玻璃的拉曼增益曲线<sup>[79]</sup>

Fig.14 Raman gain coefficient profiles of TBZN glass<sup>[79]</sup>

在光纤中的级联拉曼散射现象研究方面: 2011 年, 日本丰田工业大学 Liao 等在拉锥硼酸盐微结构光纤中观察到了五级级联拉曼散射, 受到自相位调制、交叉相位调制等非线性效应的影响, 其输出光谱为包含五个拉曼斯托克斯峰的超连续光谱, 其光谱覆盖  $730\text{~}1700\text{ nm}$ <sup>[80]</sup>。2022 年, 日本丰田工业大学 Cheng 等采用工作波长为  $1545\text{ nm}$  的纳秒激光作为泵浦光源,  $2.5\text{ m}$  长的硼酸盐微结构光纤作为拉曼增益介质, 在级联拉曼散射效应和四波混频效应的共同作用下, 获得了中红外波段激光输出<sup>[81]</sup>。

在拉曼光纤激光器方面: 2008 年, 日本丰田工业

大学 Qin 等利用磷酸盐玻璃光纤作为拉曼增益介质, 研制出工作波长调谐范围覆盖  $1495\text{~}1600\text{ nm}$  (带宽  $>100\text{ nm}$ ) 的拉曼光纤激光器<sup>[82]</sup>。2015 年, 美国亚利桑那大学 Zhu 等在理论上研究了磷酸盐玻璃光纤和泵浦激光参数对中红外波段拉曼激光器性能的影响, 结果表明, 利用磷酸盐玻璃光纤有望获得输出功率为十瓦量级的  $2\text{~}5\mu\text{m}$  中红外拉曼激光<sup>[21]</sup>。

在中红外拉曼孤子激光光源研制方面: 2012 年, 吉林大学 Liu 等在纤芯直径为  $1.1\mu\text{m}$  的磷酸盐微结构光纤中实现了波长调谐范围覆盖  $1.6\text{~}2.2\mu\text{m}$  的拉曼孤子激光光源<sup>[83]</sup>。2016 年, 中国科学院上海光学精密机械研究所 Bi 等采用  $1958\text{ nm}$  皮秒脉冲激光泵浦磷酸盐微结构光纤, 研制出波长调谐范围覆盖  $1990\text{~}2264\text{ nm}$  的拉曼孤子激光光源, 所获得的孤子激光脉冲宽度为  $\sim 40\text{ fs}$ <sup>[84]</sup>。2015 年, 日本丰田工业大学 Zhang 等利用双折射磷酸盐微结构光纤作为增益介质, 搭建了中红外拉曼孤子激光器。当泵浦光激发光纤快轴时, 获得了波长调谐范围覆盖  $2050\text{~}2730\text{ nm}$  的多孤子激光光源<sup>[85]</sup>。同年, 俄罗斯科学院应用物理研究所 Koptev 等利用  $2\mu\text{m}$  掺铥飞秒光纤激光器作为泵浦源, 利用磷酸盐微结构光纤作为增益介质, 获得了调谐波长覆盖  $2.1\text{~}2.65\mu\text{m}$  的拉曼孤子激光光源<sup>[86]</sup>。2020 年, 该团队 Anashkina 等数值模拟了基于磷酸盐微结构光纤的中红外拉曼孤子产生<sup>[22]</sup>。计算结果表明, 利用  $2.8\mu\text{m}$  激光泵浦磷酸盐玻璃光纤, 可以获得波长调谐范围覆盖  $2.8\text{~}4.8\mu\text{m}$  的中红外拉曼孤子激光光源, 如图 15 所示。

最近, 笔者研究组研制出一种具有高稳定性的氟磷酸盐玻璃 ( $70\text{TeO}_2\text{-}20\text{BaF}_2\text{-}10\text{Y}_2\text{O}_3$ , TBY), 该玻璃的透过窗口覆盖  $0.4\text{~}5.5\mu\text{m}$ , 玻璃转变温度为  $425\text{ }^\circ\text{C}$ , 高于目前所报道的氟化物、硫化物以及硼酸盐玻璃, 同时该玻璃还具有良好的抗潮解性能和抗激光损伤特性<sup>[74,87]</sup>。目前, 基于该种玻璃光纤已实现可长期稳定运转的  $25.8\text{ W}$  全光纤中红外超连续光源<sup>[88]</sup>。为了探索其在拉曼激光光源研制方面的应用潜力, 对上述氟磷酸盐玻璃光纤中的拉曼散射特性开展了系列研究。首先, 采用比较法计算了该种玻璃在  $1550\text{ nm}$  激光泵浦下的拉曼增益谱, 如图 16 所示<sup>[89]</sup>。TBY 玻璃的峰值拉曼频移位于  $785\text{ cm}^{-1}$  ( $23.5\text{ THz}$ ), 相应的拉

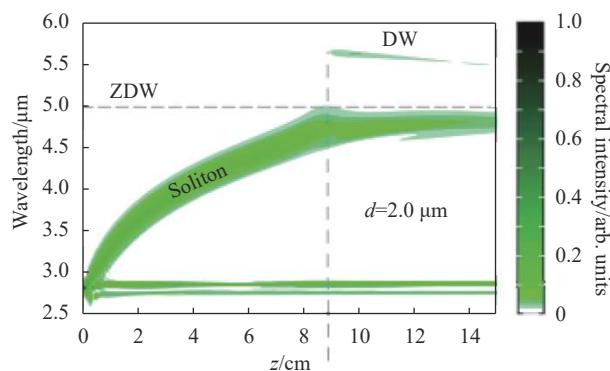
图 15 数值模拟拉曼孤子在碲酸盐微结构光纤中的光谱演化<sup>[22]</sup>

Fig.15 Simulated evolution of Raman soliton during propagation in tellurate microstructure fibers<sup>[22]</sup>

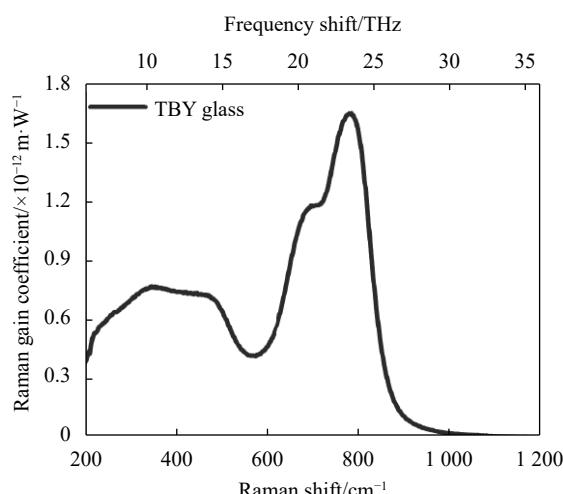
图 16 TBY 玻璃的拉曼增益谱<sup>[89]</sup>

Fig.16 Raman gain spectrum of TBY glass<sup>[89]</sup>

曼增益系数为  $1.65 \times 10^{-12} \text{ m/W}$  @1550 nm, 约为石英玻璃的 25.4 倍。

验证上述氟碲酸盐玻璃光纤在拉曼激光器方面的应用潜力, 笔者研究组设计并制备了具有芯径为~13 μm 的氟碲酸盐玻璃光纤。图 17 中的插图给出了该光纤截面的扫描电镜照片, 其零色散波长位于 1993 nm, 非线性系数为  $21.37 \text{ km}^{-1}\text{W}^{-1}$ 。采用回切法测得该光纤在 1550 nm 处的传输损耗为 0.78 dB/m<sup>[89]</sup>。

利用上述氟碲酸盐玻璃光纤作为拉曼增益介质, 利用工作波长 1550 nm、脉冲宽度 3 ns、重复频率 80 kHz 的光纤激光器作为泵浦源, 搭建了级联拉曼散射实验装置。随着泵浦光功率的提升, 光纤内的自发拉曼散射光会通过受激拉曼散射过程放大, 放大后的斯托克斯光会通过级联过程激发下一级斯托克斯光,

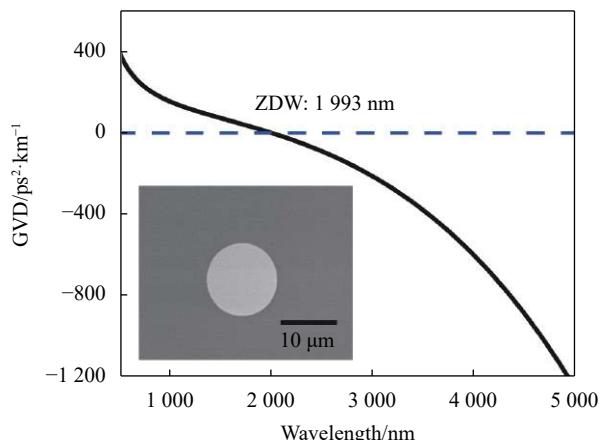
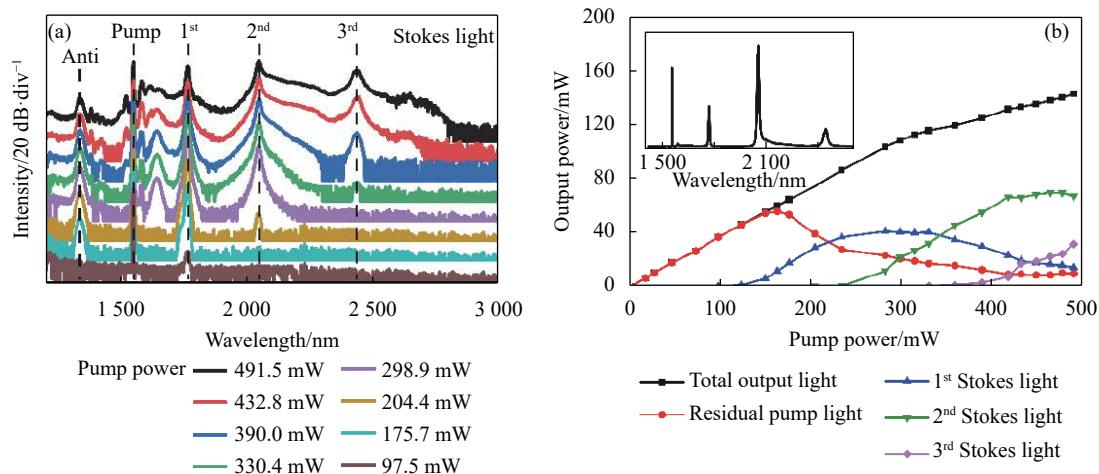
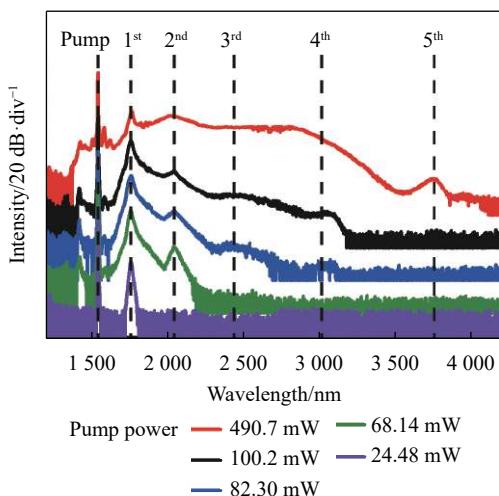
图 17 氟碲酸盐玻璃光纤的群速度色散曲线, 插图为氟碲酸盐玻璃光纤的截面扫描电镜照片<sup>[89]</sup>

Fig.17 Group velocity dispersion curve of fluorotellurite fibers. Inset: cross-sectional scanning electron micrograph of fluorotellurite fibers<sup>[89]</sup>

如图 18(a) 所示。图 18(b) 给出了总输出功率, 残余泵浦光输出功率和一级、二级、三级斯托克斯光输出功率随泵浦光功率的变化规律。当泵浦光功率达到 491.5 mW 时, 分别于 1765、2049、2438 nm 处产生一级、二级和三级斯托克斯光, 其输出功率分别为 14.1、67.4、31.6 mW, 相应的转换效率分别为 2.87%、13.70%、6.43%。在上述工作基础上, 进一步采用纤芯直径为 6 μm 的氟碲酸盐玻璃光纤作为增益介质, 观察到了中心波长位于 3700 nm 的五级拉曼散射光, 如图 19 所示。

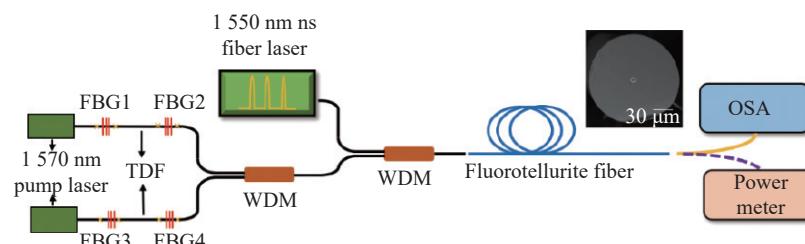
为了验证该玻璃光纤在拉曼光纤放大器研制方面的应用潜力, 笔者研究组搭建了如图 20 所示的级联拉曼光纤放大器实验装置<sup>[90]</sup>, 采用 1550 nm 纳秒激光器作为泵浦源, 实验室自制的 1765.0 nm 和 2049.2 nm 连续掺钕光纤激光器作为信号源, 芯径~5 μm 的氟碲酸盐玻璃光纤作为拉曼增益介质。图 21 分别给出了各级拉曼光纤放大器输出功率和转换效率随泵浦光功率的变化。使用 1765.0 nm 光纤激光器作为信号源时, 获得了净增益为 22.6 dB、光光转换效率为 36.76% 的拉曼激光放大, 放大后的激光输出功率为 190.9 mW, 脉冲宽度为 3.42 ns。使用 1765.0 nm 和 2049.2 nm 光纤激光器共同作为信号源时, 获得了净增益为 21.3 dB、光光转换效率为 24.24% 的级联拉曼激光放大, 放大后的激光输出功率为 135.35 mW, 脉冲宽度为 3.36 ns。随后, 将氟碲酸盐玻璃光纤的长度

图 18 基于氟碲酸盐玻璃光纤的三级级联拉曼频移实验结果<sup>[89]</sup>。(a) 输出光谱; (b) 输出功率Fig.18 Experimental results of third cascaded Raman shift based on fluorotellurite fiber<sup>[89]</sup>. (a) Output spectra; (b) Output power图 19 五级级联拉曼频移实验结果<sup>[89]</sup>Fig.19 Experimental results of fifth cascaded Raman shift<sup>[89]</sup>

增加至 10 m, 获得了三级级联拉曼放大。注: 在光纤内, 放大的 1765.0 nm 和 2049.2 nm 激光由于非简并四波混频的作用, 产生了工作波长位于 2442.6 nm 的斯托克斯光, 该激光联合 1765.0 nm 和 2049.2 nm 激光共同作为信号源, 构成了三级级联拉曼光纤放大

器。由于四波混频产生的 2442.6 nm 激光能量较弱, 最终放大的三级拉曼斯托克斯光的输出功率仅为 18.84 mW, 相应的光光转换效率为 3.86%。

在中红外拉曼孤子激光光源方面: 2018 年, 笔者课题组利用工作波长为 1960 nm 的飞秒光纤激光器泵浦一段具有双零色散波长的氟碲酸盐玻璃光纤, 获得了波长调谐范围覆盖 1.96~2.82 μm 的拉曼孤子激光输出<sup>[91]</sup>。2022 年, 电子科技大学 Chang 等利用工作波长更长的 2.8 μm 飞秒激光泵浦氟碲酸盐玻璃光纤, 将相应中红外拉曼孤子激光的工作波长拓展至 ~3.17 μm, 结果如图 22 所示<sup>[24]</sup>。实验中泵浦种子光源由掺铒 ZBLAN 锁模光纤激光器提供, 其工作波长为 2.8 μm。泵浦脉冲光源在放大器中的掺铒 ZBLAN 光纤中首先进行了预频移, 当放大器泵浦功率为 5.55 W 时, 孤子频移至 2910 nm, 此时放大器总输出功率为 773 mW, 脉冲宽度为 ~200 fs。孤子脉冲在氟碲酸盐玻璃光纤中产生进一步频移, 最终获得波长调谐范围覆盖 2.8~3.17 μm 的中红外拉曼孤子激光光

图 20 基于氟碲酸盐玻璃光纤的级联拉曼放大器实验装置示意图<sup>[90]</sup>Fig.20 Experimental setup of cascaded Raman amplifier based on fluorotellurite fiber<sup>[90]</sup>

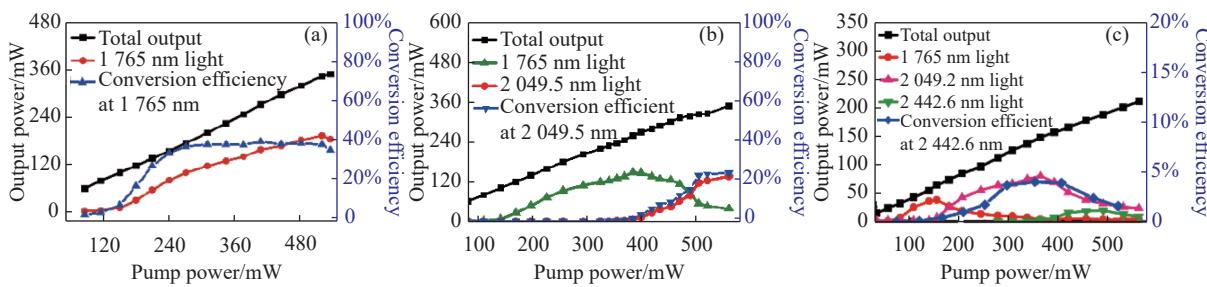


图 21 级联拉曼放大器总输出功率及相应转换效率随泵浦光功率变化规律<sup>[90]</sup>。(a) 一级放大器; (b) 二级级联放大器; (c) 三级级联放大器

Fig.21 The output of cascade Raman amplifier powers and corresponding conversion efficient versus the launched pump power<sup>[90]</sup>. (a) First-order amplifier; (b) Second-order cascaded amplifier; (c) Third-order cascaded amplifier

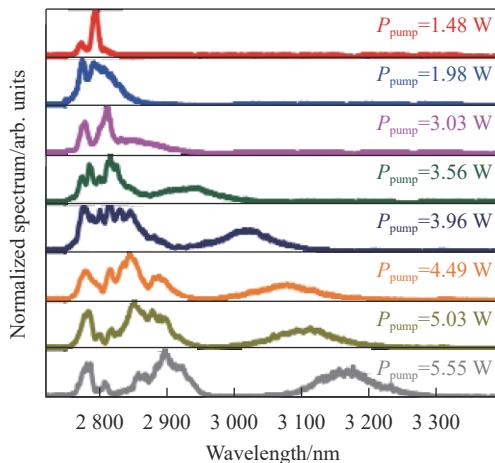


图 22 氟碲酸盐玻璃光纤输出光谱随放大器泵浦光功率的变化规律<sup>[24]</sup>

Fig.22 Dependence of the spectrum from the fluorotellurite fiber on launched pump power in the amplifier<sup>[24]</sup>

源, 其中  $3.17 \mu\text{m}$  孤子激光的平均输出功率为  $38.9 \text{ mW}$ , 脉冲能量为  $0.744 \text{ nJ}$ , 相应的转换效率为  $26\%$ 。数值模拟结果显示, 利用该氟碲酸盐玻璃光纤作为非线性介质可将拉曼孤子激光的工作波长拓展至  $\sim 3.831 \mu\text{m}$ , 如图 23 所示<sup>[23]</sup>。

对于双两个零色散波长光纤, 当拉曼孤子红移至光纤的第二零色散波长处时, 拉曼孤子将停止频移并在长波区产生红移色散波, 其频率由光纤的第二零色散波长位置决定。因此, 原则上利用色散精密调控的光纤作为非线性介质, 通过孤子自频移效应和红移色散波的产生可获得任意波长处的中红外激光光源。为了验证上述思想, 笔者课题组设计并制备了具有双零色散波长的色散调控氟碲酸盐玻璃光纤, 其数值孔径为  $1.1$ , 芯径为  $2.6 \mu\text{m}$ , 零色散波长分别为  $1.328 \mu\text{m}$  和  $3.551 \mu\text{m}$ , 如图 24 所示<sup>[92]</sup>。

利用该光纤作为非线性介质, 利用工作波长为

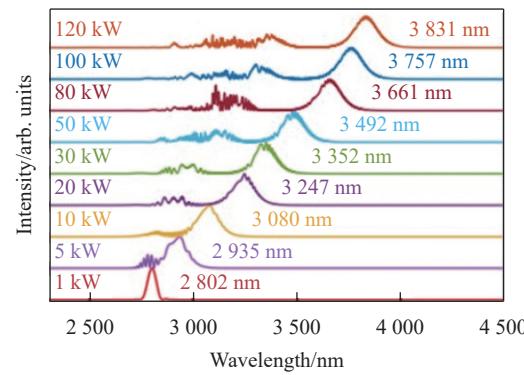


图 23 理论计算  $2.8 \mu\text{m}$  激光泵浦下的输出脉冲光谱<sup>[23]</sup>

Fig.23 Simulation results of the spectra of the output pulses when pumping at  $2.8 \mu\text{m}$ <sup>[23]</sup>

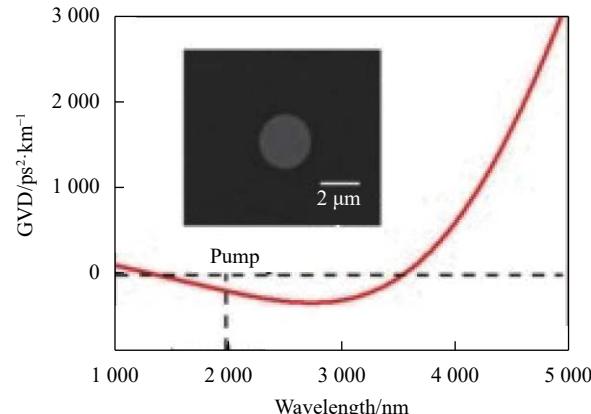


图 24 氟碲酸盐玻璃光纤中 LP01 模式的群速度色散曲线, 插图为氟碲酸盐玻璃光纤的截面扫描电镜照片<sup>[92]</sup>

Fig.24 Group velocity dispersion curves of LP01 modes propagating in the fluorotellurite fibers. Inset: cross-sectional scanning electron micrograph of fluorotellurite fibers<sup>[92]</sup>

$1.98 \mu\text{m}$  的飞秒激光器作为泵浦光源, 搭建了实验测试装置, 获得了输出波长位于  $\sim 4 \mu\text{m}$  的色散波光源, 如图 25 所示。实验中测得的总输出功率为  $0.573 \text{ W}$ ,

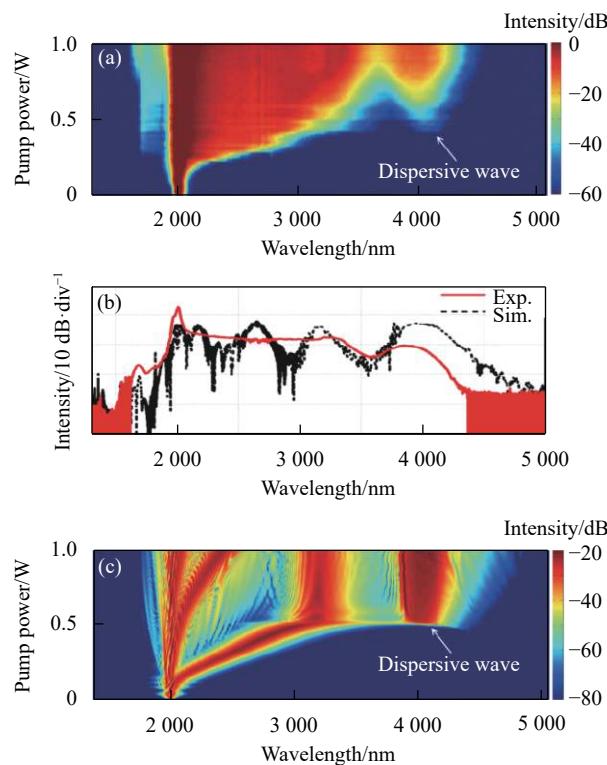


图 25 中红外色散波产生实验结果<sup>[92]</sup>。(a) 测量得 1 m 长氟碲酸盐玻璃光纤输出光谱随 1.98 μm 飞秒激光器平均泵浦功率的演化; (b) 平均泵浦功率 1 W 下的实验测量光谱与数值模拟光谱; (c) 数值模拟 1 m 长氟碲酸盐玻璃光纤输出光谱随 1.98 μm 飞秒激光器平均泵浦功率的演化

Fig.25 Experimental results<sup>[92]</sup>. (a) Measured spectral evolution of output signals from a 1 m long fluorotellurite fiber with the average power of the 1.98 μm femtosecond laser; (b) Simulated and measured spectra output from the fluorotellurite fiber for a same average pump power of ~1 W; (c) Simulated spectral evolution of output signals from a 1 m long fluorotellurite fiber with the average power of the 1.98 μm femtosecond laser

其中波长 4 μm 处的色散波的平均功率为~12 mW, 脉冲能量为 0.24 nJ, 相应的转换效率为~1.2%。数值模拟结果显示, 由于泵浦光波长位于该光纤的反常色散区, 首先产生高阶孤子, 高阶孤子在高阶色散的微扰作用下劈裂出基阶拉曼孤子, 进而产生拉曼孤子自频移效应。当拉曼孤子频移至光纤的第二零色散波长处时, 发生孤子自频移抵消效应并产生波长为~4 μm 的红移色散波。此外, 笔者课题组还基于自制氟碲酸盐玻璃光纤, 先后研制出输出光谱范围覆盖 0.6~5.4 μm 和输出平均功率为 25.8 W 的中红外超连续光源<sup>[88,93]</sup>。上述研究结果表明, 该氟碲酸盐玻璃光纤在实用化高

功率中红外拉曼激光光源研制方面具有十分巨大的应用潜力。通过进一步优化泵浦激光和氟碲酸盐玻璃光纤参数, 有望实现输出功率为数十瓦量级甚至百瓦量级的中红外拉曼激光光源。

## 4 结 论

高功率中红外光纤激光光源在前沿科学研究、空间光通信、医学诊断与治疗、环境污染监测和光电对抗等领域有着重要应用。利用光纤中的受激拉曼散射效应是实现高功率中红外激光输出的有效途径。目前, 基于硫系玻璃光纤、氟化物玻璃光纤和碲酸盐玻璃光纤等中红外光纤材料, 分别实现了工作波长位于 3.77 μm 的拉曼光纤激光器, 平均输出功率为 3.7 W 的 2231 nm 拉曼光纤激光器和波长调谐范围覆盖 2~4.3 μm 的拉曼孤子激光光源。笔者课题组研制出一种热学和化学稳定性好、激光损伤阈值高和拉曼频移量大的氟碲酸盐玻璃光纤, 进一步利用其作为非线性介质, 先后实现了级联拉曼散射、级联拉曼光纤放大器、波长调谐范围覆盖 1.96~2.82 μm 的拉曼孤子激光以及波长为~4 μm 的红移色散波。

## 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*, 2019, 445(7128): 627-630.
- [2] Shi J, Wong T T W, He Y, et al. High-resolution, high-contrast mid-infrared imaging of fresh biological samples with ultraviolet-localized photoacoustic microscopy [J]. *Nature Photonics*, 2019, 13: 609-615.
- [3] Hwa L G, Chang Y R, Chao W C. Infrared spectra of lanthanum gallogermanate glasses [J]. *Materials Chemistry and Physics*, 2004, 85(1): 158-162.
- [4] Stuart A D. Some applications of infrared optical sensing [J]. *Sensors and Actuators B: Chemical*, 1993, 11(1-3): 185-193.
- [5] Mandon J, Guelachvili G, Picqué N. Fourier transform spectroscopy with a laser frequency comb [J]. *Nature Photonics*, 2009, 3(2): 99-102.
- [6] 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.
- [7] Walsh B M, Lee H R, Barnes N P. Mid infrared lasers for remote

- sensing applications [J]. *Journal of Luminescence*, 2016, 169: 400-405.
- [8] Tacchino S. Fiber lasers for medical diagnostics and treatments: State of the art, challenges and future perspectives [C]// Proceedings of SPIE, 2017, 10058: 1005808.
- [9] Jia Zhixu, Guo Xiaohui, Jiao Yadong, et al. Progress on mid-infrared Raman lasers based on special glass fibers (invited) [J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2022, 49(1): 0101004. (in Chinese)
- [10] Zhou Pu, Yao Tianfu, Fan Chenchen, et al. 50<sup>th</sup> anniversary of Raman fiber laser: History, progress and prospect (invited) [J]. *Infrared and Laser Engineering*, 2022, 51(1): 20220015. (in Chinese)
- [11] Lines M E. The search for very low loss fiber-optic materials [J]. *Science*, 1984, 226(4675): 663-668.
- [12] Agrawal G P. Nonlinearfiber Optics[M]. New York: Academic Press, 2013.
- [13] Glick Y K, 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): 4755-475.
- [14] Chen Y Z, Yao T F, Huang L J, et al. 2 kW high-efficiency Raman fiber amplifier based on passive fiber with dynamic analysis on beam cleanup and fluctuation [J]. *Optics Express*, 2020, 28(3): 3495-3504.
- [15] Song J X, Ma P F, Ren S, et al. 2 kW narrow-linewidth Yb-Raman fiber amplifier [J]. *Optics Letters*, 2021, 46(10): 2404-2407.
- [16] Supradeepa V R, Nicholson J W. Power scaling of high-efficiency 1.5 μm cascaded Raman fiber lasers [J]. *Optics Letters*, 2013, 38(14): 2538-2541.
- [17] Zhang L, Dong J, Feng Y. High-power and high-order random Raman fiber lasers [J]. *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics*, 2018, 24(3): 1-6.
- [18] 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.
- [19] Tang Y, Wright L G, Charan K, et al. Generation of intense 100 fs solitons tunable from 2 to 4.3 μm in fluoride fiber [J]. *Optica*, 2016, 3(9): 948-951.
- [20] Bernier M, Fortin V, El-amraoui M, et al. 3.77 μm fiber laser based on cascaded Raman gain in Al chalcogenide glass fiber [J]. *Optics Letters*, 2014, 39(7): 2052-2055.
- [21] Zhu G, Geng L, Zhu X, et al. Towards ten-watt-level 3-5 μm Raman lasers using tellurite fiber [J]. *Optics Express*, 2015, 23(6): 7559-7573.
- [22] Anashkina E A, Dorofeev V V, Skobelev S A, et al. Microstructured fibers based on tellurite glass for nonlinear conversion of mid-IR ultrashort optical pulses [J]. *Photonics*, 2020, 7(3): 51.
- [23] Hou Y W, Wu Q, Liu F, et al. Numerical demonstration of the soliton self-frequency shift process beyond 8 μm in a tellurite-chalcogenide fiber cascaded structure [J]. *IEEE Photonics Journal*, 2022, 14(4): 1540412.
- [24] Chang P F, Luo H Y, Wu Q, et al. Tunable mid-infrared Raman soliton generation from 2.80 to 3.17 μm based on fluorotellurite fiber [J]. *IEEE Photonics Technology Letters*, 2022, 34(21): 1183-1186.
- [25] Liu Ruite, Jiang Yiguang, Zhang Longfei, et al. Mid-Infrared fluoride glass fibers – a short review [J]. *Journal of the Chinese Ceramic Society*, 2022, 50(4): 1085-1099. (in Chinese)
- [26] Seed M. Heavy metal fluoride glass fibers and their applications [C]//Proc of SPIE, 2011, 8307: 83070N.
- [27] Jia S J, Jia Z X, Yao C F, et al. 2875 nm lasing from Ho<sup>3+</sup>-doped fluoroindate glass fibers [J]. *IEEE Photonics Technology Letters*, 2018, 30(4): 323-326.
- [28] Maes F, Fortin V, Poulaing S, et al. Room temperature fiber laser at 3.92 μm [J]. *Optica*, 2018, 5(7): 761-764.
- [29] Majewski M R, Woodward R I, Carréé J Y, et al. Emission beyond 4 μm and mid-infrared a dysprosium-doped indium fluoride (InF<sub>3</sub>) fiber [J]. *Optics Letters*, 2018, 43(8): 1926-1929.
- [30] Jia S J, Jia Z X, Yao C F, et al. Ho<sup>3+</sup> doped fluoroaluminate glass fibers for 2.9 μm lasing [J]. *Laser Physics*, 2018, 28: 015802.
- [31] He H Y, Jia Z X, Jia S J, et al. Ho<sup>3+</sup>/Pr<sup>3+</sup> co-doped AlF<sub>3</sub> based glass fibers for efficient ~2.9 μm lasers [J]. *IEEE Photonics Technology Letters*, 2020, 32(23): 1489-1492.
- [32] Jia S J, Li C Z, Zhao Z P, et al. Er<sup>3+</sup>-doped ZnF<sub>2</sub>-BaF<sub>2</sub>-SrF<sub>2</sub>-YF<sub>3</sub> fluoride glasses for 2.7 μm laser applications [J]. *Materials Letters*, 2018, 227: 97-99.
- [33] He H Y, Jia S J, Ohishi Y, et al. Efficient ~4 μm emission from Pr<sup>3+</sup>/Yb<sup>3+</sup> co-doped fluoroindate glass [J]. *Optics Letters*, 2021, 46(22): 5607-5610.
- [34] Jiang Yiguang, Guan Feng, Yuan Xinqiang, et al. Fluoride mid-infrared optical fiber [C]//Abstract Collection of the Second National Optoelectronic Materials and Devices Symposium, China Rare Earth Society, 2021. (in Chinese)
- [35] Jiang Yiguang, Yuan Xinqiang, Zhang long. Research on the preparation of mid-infrared perfluoride glass fiber [C]//The 10th

- China Functional Glass Symposium and New Optoelectronics Abstracts of International Forum on Materials, Chinese Ceramic Society, 2018. (in Chinese)
- [36] Wang S B, Zhang J Q, Xu N N, et al. 2.9  $\mu\text{m}$  lasing from a Ho<sup>3+</sup>/Pr<sup>3+</sup> co-doped AlF<sub>3</sub>-based glass fiber pumped by a 1150 nm laser [J]. *Optics Letters*, 2020, 45(5): 1216-1219.
- [37] Xu N N, Yang Z Y, Zhang J Q, et al. Direct femtosecond laser inscription of Bragg gratings in Ho<sup>3+</sup>/Pr<sup>3+</sup> co-doped AlF<sub>3</sub>-based glass fibers for a 2.86  $\mu\text{m}$  laser [J]. *Optics Letters*, 2022, 47(3): 597-600.
- [38] Zhang J Q, Zhao H Y, Wang R C, et al. 3.9  $\mu\text{m}$  emission in Nd<sup>3+</sup> sensitized Ho<sup>3+</sup> doped fluoroaluminate glasses [J]. *Journal of Alloys and Compounds*, 2021, 46(9): 2031-2034.
- [39] Zhang J, Wang R C, Liu M, et al. ZnF<sub>2</sub>-modified AlF<sub>3</sub>-based fluoride glasses with enhanced mid-infrared 3.5  $\mu\text{m}$  emission [J]. *Journal of the American Ceramic Society*, 2022, 105(9): 4691-4698.
- [40] Saïssy A, Botineau J, Macon L. Diffusion Raman dans une fibre optique en verre fluoré [J]. *Journal de Physique Lettres*, 1985, 46(6): 289-294.
- [41] Almeida R M, Mackenzie J D. Vibrational spectra and structure of fluorozirconate glasses [J]. *Journal of Chemical Physics*, 1981, 74(11): 5954-5961.
- [42] Durteste Y, Monerie M, Lamouler P. Raman amplification in fluoride glass fibres [J]. *Electronics Letters*, 1985, 21(17): 723-724.
- [43] Almeida R M, Pereira J C, Messaddeq Y, et al. Vibrational spectra and structure of fluoroindate glasses [J]. *Journal of Non-Crystalline Solids*, 1993, 161: 105-108.
- [44] Cheng T, Gao W, Xue X, et al. Fourth-order cascaded Raman shift in a birefringence ZBLAN fluoride fiber [J]. *Optical Fiber Technology*, 2017, 36: 245-248.
- [45] Fortin V, Bernier M, Carrier J, et al. Fluoride glass Raman fiber laser at 2185 nm [J]. *Optics Letters*, 2011, 36(21): 4152-4154.
- [46] Duval S, Gauthier J C, Robichaud L R, et al. Watt-level fiber-based femtosecond laser source tunable from 2.8 to 3.6  $\mu\text{m}$  [J]. *Optics Letters*, 2016, 41(22): 5294-5297.
- [47] Nagl N, Mak K F, Wang Q, et al. Efficient femtosecond mid-infrared generation based on a Cr: ZnS oscillator and step-index fluoride fibers [J]. *Optics Letters*, 2019, 44(10): 2390-2393.
- [48] Tiliouine I, Delauaye H, Granger G, et al. Fiber-based source of 500 kW mid-infrared solitons [J]. *Optics Letters*, 2021, 46(23): 5890-5893.
- [49] Zhu X S, Peyghambarian N. High-power ZBLAN glass fiber laser: review and prospect [J]. *Advances in Optoelectronics*, 2010: 1-23.
- [50] Yang L Y, Li Y, Zhang B, et al. 30-W supercontinuum generation based on ZBLAN fiber in an all-fiber configuration [J]. *Photonics Research*, 2019, 7(9): 1061-1065.
- [51] Slusher R E, Shaw L B, Hodelin J. Large Raman gain and nonlinear phase shifts in high-purity As<sub>2</sub>Se<sub>3</sub> chalcogenide fibers [J]. *Journal of the Optical Society of America B*, 2004, 21(6): 1146-1155.
- [52] Coractive. IR fibers [EB/OL]. [2023-02-11]. <https://www.coractive.com>.
- [53] IRflex. Products [EB/OL]. [2023-02-11]. <https://irflex.com/products/>.
- [54] Art photonics. Chalcogenide IR fibers [EB/OL]. [2023-02-11]. <https://artphotonics.com/product/chalcogenide-mid-ir-fibers/>.
- [55] Guo H T, Xu Y T, Chen H Y, et al. Near- and Mid-infrared emissions of Dy<sup>3+</sup> doped and Dy<sup>3+</sup>/Tm<sup>3+</sup> co-doped lead cesium iodide modified chalcohalide glass [J]. *Journal of Luminescence*, 2014, 148: 10-17.
- [56] Guo Haitao, Cui Jian, Xu Yantan, et al. Progress in preparation and applications of low-loss chalcogenide infrared fibers [J]. *Laser and Optoelectronics Progress*, 2019, 56(17): 170606. (in Chinese)
- [57] Dai Shixun, Wang Min, Wang Yingying, et al. Review of mid-infrared supercontinuum spectrum generation based on chalcogenide glass fibers [J]. *Laser and Optoelectronics Progress*, 2020, 57(7): 071603. (in Chinese)
- [58] Feng Xian, Yang Zhiyong, Shi Jindan. Progress in chalcogenide glass photonic crystal fibers with ultra-large mode area (invited) [J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2022, 49(1): 0101006. (in Chinese)
- [59] Xu Yantao, Guo Haitao, Yan Xingtao, et al. Preparation and applications of low-loss As-S chalcogenide glass fibers [J]. *Journal of Inorganic Materials*, 2015, 30(1): 97-101. (in Chinese)
- [60] Xu Yantao, Guo Haitao, Lu Min, et al. Preparation and properties of low-loss core-cladding structural Ge-Sb-Se chalcogenide glass fibers [J]. *Infrared and Laser Engineering*, 2015, 44(1): 182-187. (in Chinese)
- [61] Aggarwal I D, Sanghera J S. Development and applications of chalcogenide glass optical fibers at NIL [J]. *Journal of Optoelectronics and Advanced Materials*, 2002, 4(3): 665-678.

- [62] Duham M, Renard W, Canat G, et al. Fourth-order cascaded Raman shift in AsSe chalcogenide suspended-core fiber pumped at 2  $\mu\text{m}$  [J]. *Optics Letters*, 2011, 36(15): 2859-2861.
- [63] Cheng T L, Li S G, Yan X, et al. Mid-infrared cascaded stimulated Raman scattering up to eight orders in As-S optical fiber [J]. *Optics Express*, 2018, 26(9): 12007-12015.
- [64] Wang F, Zhou X, Zhang X N, et al. Mid-infrared cascaded stimulated Raman scattering and flat supercontinuum generation in an As-S optical fiber pump at 2  $\mu\text{m}$  [J]. *Applied Optics*, 2021, 60(22): 6351-6356.
- [65] Jackson S D, Sánchez G A. Chalcogenide glass Raman fiber laser [J]. *Applied Physics Letters*, 2006, 88(22): 221106.
- [66] Bernier M, El-amraoui M, Couillard J F, et al. Writing of Bragg gratings through the polymer jacket of low-loss  $\text{As}_2\text{S}_3$  fibers using femtosecond pulses at 800 nm [J]. *Optics Letters*, 2012, 37(18): 3900-3902.
- [67] Bernier M, Fortin V, Caron N, et al. Mid-infrared chalcogenide glass Raman fiber laser [J]. *Optics Letters*, 2013, 38(2): 127-129.
- [68] Peng X F, Zhang P Q, Wang X S, et al. Modeling and simulation of a mid-IR 4.3  $\mu\text{m}$  Raman laser in chalcogenide glass fibers [J]. *OSA Continuum*, 2019, 2(8): 2281-2292.
- [69] Cheng T L, Usaki R, Duan Z C, et al. Soliton self-frequency shift and third-harmonic generation in a four-hole  $\text{As}_2\text{S}_5$  microstructured optical fiber [J]. *Optics Express*, 2014, 22(4): 3740-3746.
- [70] Cheng T L, Kanou Y, Asano K, et al. Soliton self-frequency shift and dispersive wave in a hybrid four-hole  $\text{AsSe}_2\text{-As}_2\text{S}_5$  microstructured optical fiber [J]. *Applied Physics Letters*, 2014, 104(12): 121911.
- [71] Wan Rui, Yang Liqing, Huo Weirong, et al. Research progress of mid-infrared tellurite glass and optical fibers (Invited) [J]. *Bulletin of the Chinese Ceramic Society*, 2022, 41(8): 2589-2603. (in Chinese)
- [72] Liu Wei, Zhou Xue, Zhang Fan, et al. Progress on tellurite glass and its optical fiber in sensing application [J]. *Bulletin of the Chinese Ceramic Society*, 2022, 50(8): 2326-2337. (in Chinese)
- [73] Feng X, Shi J, Segura M, et al. Halo-tellurite glass fiber with low OH content for 2-5  $\mu\text{m}$  mid-infrared nonlinear applications [J]. *Optics Express*, 2013, 21(16): 18949-18954.
- [74] 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.
- [75] Wang J J, Jia Z Z, Zhang C Z, et al. Thulium-doped fluorotellurite glass fibers for broadband S-band amplifiers [J]. *Optics Letters*, 2022, 47(8): 1964-1967.
- [76] Kedenburg S, Strutynski C, Kibler B, et al. High repetition rate mid-infrared supercontinuum generation from 1.3 to 5.3  $\mu\text{m}$  in robust step-index tellurite fibers [J]. *Journal of the Optical Society of America B*, 2017, 34(3): 601-607.
- [77] Hrabovsky J, Desevedavy F, Strizik L, et al. Glass formation and properties of the  $\text{TeO}_2\text{-ZnO-BaO}$  tellurite optical glasses [J]. *Journal of Non-Crystalline Solids*, 2022, 582: 121445.
- [78] Sekiya T, Mochida N, Ohtsuka A, et al. Raman spectra of  $\text{BO}_{3/2}\text{-TeO}_2$  glasses [J]. *Journal of Non-Crystalline Solids*, 1992, 151: 222-228.
- [79] Qin G S, Jose R, Ohishi Y. Stimulated Raman scattering in tellurite glasses as a potential system for slow light generation [J]. *Journal of Applied Physics*, 2007, 101(9): 093109.
- [80] Liao M S, Yan X, Gao W Q, et al. Five-order SRSSs and supercontinuum generation from a tapered tellurite microstructured fiber with longitudinally varying dispersion [J]. *Optics Express*, 2011, 19(16): 15389-15396.
- [81] Cheng T L, Chen X Y, Yan X, et al. Mid-Infrared stimulated raman scattering and four-wave mixing in a tellurite microstructured optical fiber [J]. *IEEE Photonics Technology Letters*, 2022, 34(4): 239-242.
- [82] 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.
- [83] 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.
- [84] Bi W J, Li X, Xing Z J, et al. Wavelength conversion through soliton self-frequency shift in tellurite microstructured fiber with picosecond pump pulse [J]. *Journal of Applied Physics*, 2016, 119(4): 043102.
- [85] Zhang L, Cheng T L, Deng D H, et al. Tunable soliton generation in a birefringent tellurite microstructured optical fiber [J]. *IEEE Photonics Technology Letters*, 2015, 27(14): 1547-1549.
- [86] 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.
- [87] Yao Y, Yang F, Dai S X, et al. Mid-infrared femtosecond laser-

- induced damage in  $\text{TeO}_2\text{-BaF}_2\text{-Y}_2\text{O}_3$  fluorotellurite glass [J]. *Optical Materials Express*, 2022, 12(4): 1670-1682.
- [88] Guo X H, Jia Z X, Jiao Y D, et al. 25.8 W all-fiber mid-infrared supercontinuum light sources based on fluorotellurite fibers [J]. *IEEE Photonics Technology Letters*, 2022, 34(7): 367-370.
- [89] Jiao Y D, Jia Z X, Guo X H, et al. Third-order cascaded Raman shift in all-solid fluorotellurite fiber pumped at 1550 nm [J]. *Optics Letters*, 2022, 47(3): 690-693.
- [90] Jiao Y D, Meng F C, Jia Z X, et al. Cascaded Raman amplifiers based on fluorotellurite fibers [J]. *Optical Materials Express*, 2022, 12(6): 2309-2317.
- [91] Li Z R, Li N, Yao C F, et al. Tunable mid-infrared Raman soliton generation from 1.96 to 2.82  $\mu\text{m}$  in an all-solid fluorotellurite fiber [J]. *AIP Advances*, 2018, 8(11): 115001.
- [92] Guo X H, Meng F C, Jia Z X, et al. Dispersive wave generation at 4  $\mu\text{m}$  in a dispersion-engineered fluorotellurite fiber pumped by a 1.98  $\mu\text{m}$  femtosecond fiber laser [J]. *Optical Materials Express*, 2022, 12(2): 634-642.
- [93] Li Z R, Yao C F, Jia Z X, et al. Broadband supercontinuum generation from 600 to 5 400 nm in a tapered fluorotellurite fiber pumped by a 2 010 nm femtosecond fiber laser [J]. *Applied Physics Letters*, 2019, 115(9): 091103.

## Progress on mid-infrared glass optical fiber materials and Raman laser source (*invited*)

Jiao Yadong, Jia Zhixu, Guo Xiaohui, Zhang Chengyun, Qin Weiping, Qin Guanshi\*

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

### Abstract:

**Significance** High-power mid-infrared fiber laser sources have important applications in molecular spectroscopy, optical communications, biomedical, remote sensing, environment monitoring, and national defense security. Currently, mid-infrared laser sources mainly include rare ion doped fiber lasers, Raman fiber lasers and broadband supercontinuum light sources. At present, 3-4  $\mu\text{m}$  fiber lasers have been demonstrated based on rare ions (such as holmium ions, erbium ions, dysprosium ions and so on) doped fluoride glass fiber. However, limited by the inherent energy levels of rare earth ions and large quantum defects, rare earth ion-doped fiber lasers are difficult to achieve lasing at any wavelength in mid-infrared band, and the laser output power decreases significantly with the increase of wavelength. Raman fiber lasers based on the stimulated Raman scattering (SRS) effects have the characteristic of low quantum loss and flexible output wavelength. SRS is an important nonlinear optical process in optical fibers, and it is an inelastic scattering with stimulated radiation properties. Raman fiber laser has a wide gain spectral bandwidth and can realize the cascade operation. So, with an appropriate pump source and a low loss gain fiber, Raman fiber lasers operating at any wavelength within the transmission window of the fiber glass matrix can be achieved, which is inaccessible for rare earth ions doped fiber laser. In addition, the Raman soliton lasers achieved by using soliton self-frequency-shift effect is also one important way to obtain widely tunable mid-infrared laser sources. Researchers are focus on developing fiber materials with wide mid-infrared transmission window, high laser damage threshold, big Raman shift, large Raman gain coefficients, and corresponding high power mid-infrared Raman laser sources.

**Progress** This paper introduces the progress of several mid-infrared glass optical fiber materials and the corresponding Raman laser sources. At present, the nonlinear medium used in the development of mid-infrared Raman laser source is mainly based on glass fibers with low loss in the mid-infrared region, including fluoride, chalcogenide and tellurite glass fibers. Fluoride glass fibers have a low transmission loss. By using fluoride glass

fiber as Raman gain media, researchers have reported a 3.7 W Raman fiber laser at 2231 nm and a Raman soliton laser source with a tunable wavelength rang covering 2-4.3  $\mu\text{m}$ . Chalcogenide glasses have the widest mid-infrared transmission window and the largest Raman gain coefficients among mid-infrared glasses. By using chalcogenide glass fiber as Raman gain media, researchers reported a second-order cascaded Raman laser operating at 3.77  $\mu\text{m}$ , which is the longest wavelength for the Raman fiber lasers obtained in mid-infrared glass fibers. However, its output power is quite low (several milliwatts). Compared with the fluoride and chalcogenide glass, tellurite glasses have a larger Raman frequency shift and stronger laser damage resistance. Theoretical studies show that using tellurite glass fibers as Raman gain media, a Raman fiber laser with an average output power of tens of watts and a Raman soliton laser source with a tunable wavelength range covering 2.8-4.8  $\mu\text{m}$  could be achieved. Very recently, to further improve the performances of tellurite fiber-based laser sources, fluorotellurite fibers with a broadband transmission window (0.4-6.0  $\mu\text{m}$ ), high laser damage threshold, big Raman shift ( $\sim 785 \text{ cm}^{-1}$ ), and large Raman gain coefficient ( $1.28 \times 10^{-12} \text{ m/W}@2 \mu\text{m}$ ) have been developed by the authors. By using them as Raman gain medium, the authors achieved fifth-order cascaded Raman shift at  $\sim 3.75 \mu\text{m}$  and build cascaded Raman amplifiers. Besides, the authors also obtained Raman soliton laser sources with wavelength tuning rang covering 1.98-2.82  $\mu\text{m}$ , and dispersive wave at  $\sim 4 \mu\text{m}$ .

**Conclusions and Prospects** As one of the important technologies to obtain mid-infrared laser sources, Raman fiber lasers have received extensive attention. At present, by using fluoride, chalcogenide or tellurite glass fibers as gain media, the Raman fiber laser operating at 3.77  $\mu\text{m}$  and Raman soliton laser source with a tunable wavelength range of 2-4.3  $\mu\text{m}$  have been developed. The authors developed fluorotellurite fibers with good stabilities and high laser damage threshold, and preliminarily verified their potential for constructing high power mid-infrared Raman laser sources. It is believed that, in the near future, by further improving the quality of fluorotellurite glass fibers, mid-infrared Raman fiber lasers with output power up to tens of Watts or even hundreds of Watts and the mid-infrared Raman soliton laser source with a tunable wavelength range covering 2-5  $\mu\text{m}$  can be realized.

**Key words:** Raman laser; infrared and far-infrared lasers; fiber lasers; fiber materials

**Funding projects:** National Natural Science Foundation of China (62090063, 62075082, U20A20210, 61827821)