

# 基于透射式液晶/聚合物光栅的分布反馈式激光器的研究\*

邓舒鹏<sup>1)2)†</sup> 李文萃<sup>1)2)</sup> 黄文彬<sup>1)2)</sup> 刘永刚<sup>1)</sup> 鲁兴海<sup>1)</sup> 宣丽<sup>1)</sup>

1) (中国科学院长春光学精密机械与物理研究所, 应用光学国家重点实验室, 长春 130033)

2) (中国科学院研究生院, 北京 100049)

(2010年7月19日收到; 2010年8月13日收到修改稿)

本文研究了染料掺杂透射式液晶/聚合物光栅的制备以及基于透射式液晶/聚合物光栅的分布反馈式激光器的激光特性. 实验选取 DCM 作为激光染料, 制备了周期为 586 nm 的掺杂 DCM 的透射式液晶/聚合物光栅; 使用 532 nm 输出的 Nd: YAG 倍频脉冲激光器作为抽运光源对染料掺杂液晶/聚合物光栅进行侧面抽运, 得到了中心波长为 603 nm 的窄线宽、低阈值激光输出. 激光线宽为 1.4 nm、阈值能量约为 17.3  $\mu\text{J}$ , 与之前国外的报道相比, 阈值能量有了很大幅度的降低.

**关键词:** 液晶/聚合物光栅, 分布反馈式激光器, 阈值, 线宽

**PACS:** 61.30.Pq

## 1. 引言

全息液晶/聚合物光栅 (holographic polymer dispersed liquid crystal, HPDLC) 是一种新型功能性光学器件, 自 1993 年由 Sutherland 等人报道后<sup>[1]</sup> 一直是国际研究的热点. 相比于普通的刻画光栅<sup>[2,3]</sup>, 这种在双光束的干涉光场中曝光产生的光栅具有制备方法简易、成本低、衍射效率电场可调等优势, 因此在集成光学, 可调谐透镜, 光通讯以及平板显示等领域有着广阔的应用前景<sup>[4-8]</sup>.

液晶/聚合物光栅是由液晶层与聚合物层交替分布形成的周期性结构, 其折射率沿着光栅矢量方向周期性变化, 因此可以将液晶/聚合物光栅看作一维带隙结构. 由于液晶具有光学性质的电场可调谐特性, 这种基于液晶/聚合物光栅的带隙结构在光子领域以及可调谐激光器领域具有极大的应用前景<sup>[9,10]</sup>. 当光束在这种带隙结构中传播时, 与光子禁带的边缘相对应的光子会产生极小的群速度和极大的态密度分布<sup>[11,12]</sup>, 如果在液晶/聚合物光栅中掺杂激光染料, 那么染料的荧光发射谱与液晶/聚合物光栅的光子禁带交叠将会在光子禁带的边缘产生低阈值的分布反馈式激光发射. 因此染料掺

杂液晶/聚合物光栅可以用于制作分布式反馈激光器, 获得窄线宽激光. 2003 年 Jakubiak 等人从掺入染料的液晶/聚合物反射式光栅中观察到了激光现象<sup>[13]</sup>, 随后 Lucchetta 小组也进行了相关研究<sup>[14]</sup>. 之后 Hsiao 等人深入研究了掺入 Pyrromethene 580 的液晶/聚合物透射式光栅的激光现象, 得到了 5 nm 的激光线宽和 0.3 mJ 的激光阈值, 并研究了在光栅上施加不同的外加电场后, 激光特性的变化<sup>[15]</sup>. 然而目前这方面的工作在国内却很少报道.

本文在前人工作的基础上选用 DCM 作为激光染料制备了相分离比较理想的染料掺杂透射式液晶/聚合物光栅, 使用 532 nm 输出的 Nd: YAG 倍频脉冲激光器作为抽运光源, 得到了中心波长为 603 nm 的窄线宽、低阈值激光输出, 并从理论和实验两方面对光栅形貌、激光光谱特性以及输出特性进行了分析与研究. 与国外的报道相比, 实验中得到的激光线宽更窄、阈值能量更低<sup>[13-16]</sup>.

## 2. 实验

### 2.1. 染料掺杂液晶/聚合物光栅的制备

本实验中, 预聚物单体选取双官能度的邻苯二

\* 国家自然科学基金 (批准号: 60277033, 50473040, 19974046, 59973020) 和吉林省科委基金 (批准号: 20020603) 资助的课题.

† E-mail: spdeng0407@gmail.com

甲酸二甘醇二丙烯酸酯(PDDA, 室温下  $n_D = 1.55$ , 由北京东方亚利化工科技有限公司提供)和五官能度的二季戊四醇羟基五丙烯酸酯(DPHPA, 室温下  $n_D = 1.49$ , 由 Aldrich 公司提供), 两者以质量分数比 1:1 混合; 液晶材料选取 TEB30A ( $n_o = 1.522$ ,  $\Delta n = 0.170$ , 清亮点为  $61.2^\circ\text{C}$ , 由石家庄永生华清液晶有限公司提供), 液晶和预聚物单体按质量分数比 3:7 混合; 同时添加少量的光引发剂 RB (Rose Bengal from Aldrich)、共引发剂 NPG (*N*-苯基甘氨酸 *N*-phenylglycine from Aldrich)、交联剂 NVP (*N*-vinyl pyrrolidinone from Aldrich), 以及 1 wt% 的激光染料 DCM (4-(二氰亚甲基)-2-甲基-6-(4-二甲氨基苯乙烯基)-4*H*-吡喃 from Aldrich). 将混合材料在  $40^\circ\text{C}$  下搅拌 24 h, 使其均匀混合.

将预聚物单体注入到由 ITO 导电玻璃制成的样品盒中, 置于双光束的干涉光场中进行曝光. 光源为 532 nm 的 Nd:YAG 激光器, 曝光时间 10 min, 单束光功率  $3.7\text{ mW}/\text{cm}^2$ . 在两束相干光形成的干涉光场中, 单体在亮区发生定域光聚合反应, 产生富聚合物区和富液晶区层状交替排列的周期性结构. 液晶盒的厚度为  $9\ \mu\text{m}$ , 由隔垫物控制. 光栅区域大小为  $8\text{ mm} \times 8\text{ mm}$ .

为了观察光栅的表面形貌, 制备好样品后, 将液晶盒打开, 把光栅薄膜浸泡在酒精中 12 h, 使光栅内部的液晶充分溶解掉, 然后将浸泡后剩下的聚合物薄膜用高纯氮吹干, 表面蒸金处理, 采用 Nanoscope Dimension 3100 型原子力显微镜进行形貌的观察.

## 2.2. 激光抽运及测试光路

激光抽运实验的装置如图 1 所示: 抽运光源选择波长为 532 nm 输出的 Nd:YAG 倍频脉冲激光器, 脉冲宽度为 8 ns, 重复频率为 10 Hz, 从激光器中出射的激光光束经过柱面镜聚焦形成一个狭窄的条状光斑, 光斑尺寸大约宽为 0.5 mm、长为 10 mm. 将制作好的染料掺杂液晶/聚合物光栅放置在柱面镜焦点处的样品架上, 当激光光斑聚焦到染料掺杂光栅上时, 激光染料 DCM 吸收到能量产生自发辐射, 发出荧光光谱, DCM 的荧光发射谱在液晶/聚合物光栅的作用下进行选频、反馈放大, 最终产生分布反馈式激光输出. 根据分布反馈式激光器的工作原理, 产生的分布反馈式激光应当沿着光栅矢量方向, 因此将光谱仪的光纤探头对准光栅矢量的方向可以对产生的分布反馈式激光进行实时探测, 测量

其光谱特性.

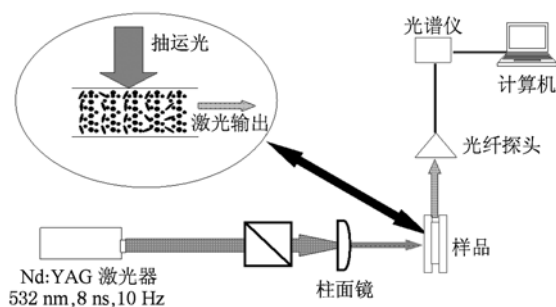


图 1 激光抽运实验的装置示意图

## 3. 结果及分析

### 3.1. 材料的吸收谱与荧光发射谱

掺杂 DCM 的液晶/聚合物透射式光栅制备完成后, 分别使用 UV-3101 型紫外-可见-近红外分光光度计(日本 SHIMADZU 公司生产)和 F-4500 荧光分光光度计(日本 HITACHI 公司生产)对其吸收谱和荧光发射谱进行测量, 测量所得的结果如图 2 所示, 虚线为材料的吸收谱, 实线为荧光发射谱. 从图中可以看出, 掺杂 DCM 的液晶/聚合物光栅在紫外光谱区以及 600 nm 以下的可见光谱区有一个较宽的吸收带, 这种宽带吸收特性是由染料分子 DCM 的宽带二能级结构决定的. 材料的荧光发射带位于 520 nm 到 700 nm 之间的可见光谱区域, 具有 180 nm 的带宽, 这种宽带荧光发射特性正是染料激光器可以实现可调谐输出的本质.

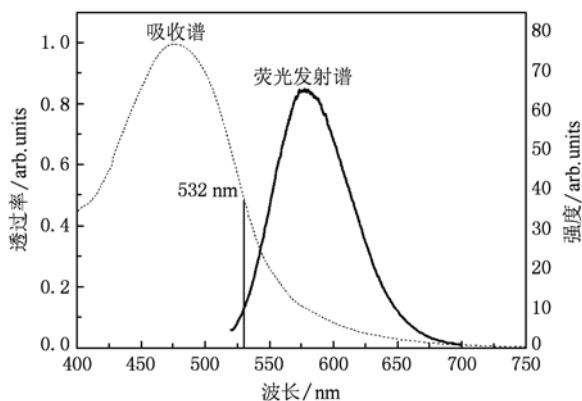


图 2 掺杂 DCM 的液晶/聚合物光栅的吸收谱与荧光发射谱

从材料的吸收特性曲线上可以看出, 材料对波长为 532 nm 的光有着很好的吸收, 在光波长 532 nm

处吸收接近 50%, 能量利用率比较高, 因此可以选择出射波长为 532 nm 的 Nd: YAG 倍频脉冲激光器作为抽运光源.

此外, 在 520 nm 到 580 nm 之间的可见光谱区域内, 掺杂 DCM 的液晶/聚合物光栅的吸收带与荧光发射带存在着明显的交叠. 在交叠区域里, 产生的荧光将会被材料重新吸收, 因此激光在此区域内是很难产生激光的, 而在超过 680 nm 的光谱区域内, 由于材料的荧光发射谱极其微弱, 因此在此区域内也很难出现激光. 最终可以得出激光只可能在 580 nm 到 680 nm 之间的光谱区域里产生, 因为在此光谱区域里, 材料的吸收非常微弱 (几乎可以忽略不计), 同时荧光发射谱相对比较强, 可以得到足够强的增益. 因此在制作染料掺杂液晶/聚合物光栅时, 必须要考虑光栅周期与光谱区域 (580—680 nm) 之间的匹配.

### 3.2. 光栅的形貌与周期

对制备好的样品使用 Nanoscope Dimension 3100 型原子力显微镜 (AFM) 观察, 得到的光栅形貌如图 3.

从图 3(a) 中可以看出, 光栅的相分离结构比较清晰, 形成了一种较理想的相分离结构, 图 3(c) 显示的是图 3(b) 中所取的线上的表面形貌分析, 可以看出光栅形貌比较规整, 周期大约为 573 nm. 图 3(c) 中纵坐标为 5 nm/格, 横坐标为 1 μm/格.

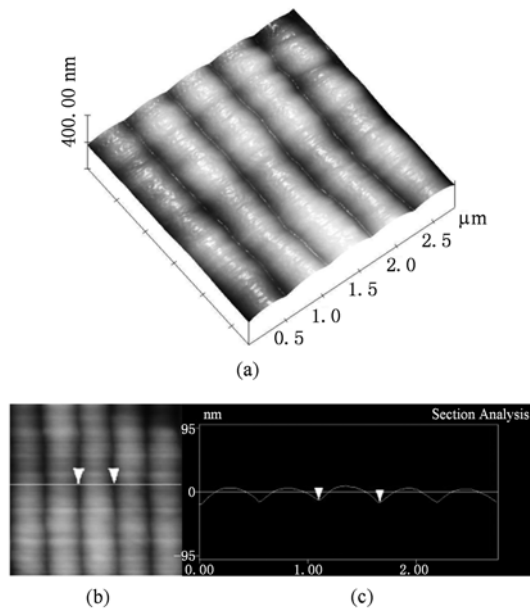


图3 液晶/聚合物光栅的 AFM 形貌 (a) 立体结构图; (b) 平面俯视图; (c) 为 (b) 图中所取的线上的表面形貌分析

下边对光栅的周期进行理论计算. 根据双光束干涉机理, 光栅周期可以由下面的公式计算:

$$\Lambda = \frac{\lambda_w}{2\sin(\theta/2)}, \quad (1)$$

其中,  $\Lambda$  表示光栅周期,  $\lambda_w$  表示干涉光波长,  $\theta$  为两束相干光之间的夹角.

本实验选取 532 nm 输出的 Nd: YAG 激光器作为干涉光源, 两束光夹角大约为 54°, 根据公 (1) 计算可以得出光栅周期为 586 nm. 而实际测量值为 573 nm, 比理论计算值较小. 分析原因主要有两个方面, 其一, 所记录光栅条纹的方向与 ITO 基板的表面存在一定的夹角, 由于 AFM 观察的是表面形貌, 因此所测得的周期事实上是实际光栅周期与上述夹角的余弦值的乘积, 这个值显然比光栅的实际周期要小一些; 其二, 由于染料掺杂液晶/聚合物光栅在前期处理中需要在乙醇中浸泡 12 h, 在浸泡的过程中有机材料非常容易发生收缩变形, 收缩后使用原子力显微镜测量所得的结果必然要比实际值小. 此外, 切割液晶盒, 以及把浸泡后剩余的聚合物薄膜粘贴在基板上这些实验步骤中都有可能引入误差.

### 3.3. 激光光谱特性

对制备好的染料掺杂液晶/聚合物光栅进行抽运, 使用光谱仪在光栅矢量方向上进行实时探测, 测得的激光光谱图如图 4 所示, 从图中可以得到: 激光的中心波长为 602.9 nm, 激光线宽为 1.4 nm. 实验中得到激光线宽比之前国外报道的窄.

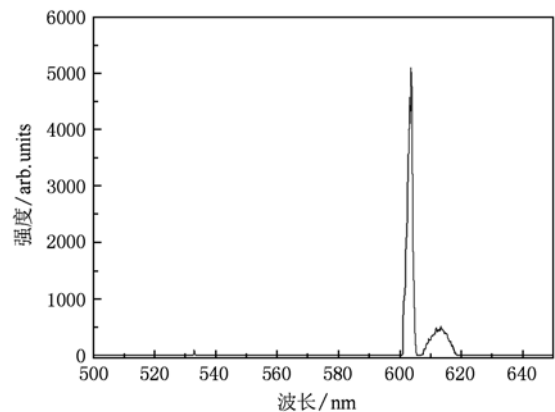


图4 掺杂 DCM 的液晶/聚合物光栅的激光光谱图

下面对激光中心波长进行理论计算. 在 Kogelnik 的分布反馈式激光器的耦合波理论<sup>[17]</sup> 中提出, DFB 激光的中心波长满足公式

$$\lambda_{\text{las}} = \frac{2n_{\text{eff}}\Lambda}{m}, \quad (2)$$

$\lambda_{\text{las}}$  表示出射激光的中心波长,  $\Lambda$  表示液晶/聚合物光栅的周期,  $m$  表示布拉格衍射级次 ( $m$  取 3),  $n_{\text{eff}}$  表示介质的平均折射率, 对于液晶/聚合物光栅, 介质的平均折射率由下列公式计算:

$$n_{\text{eff}} = n_{\text{M}}\phi_{\text{M}} + \langle n_{\text{LC}} \rangle \phi_{\text{LC}}, \quad (3)$$

$$\langle n_{\text{LC}} \rangle = \frac{2n_{\text{o}} + n_{\text{e}}}{3}, \quad (4)$$

$n_{\text{M}}$  和  $\phi_{\text{M}}$  分别表示单体的折射率和质量分数,  $\langle n_{\text{LC}} \rangle$  和  $\phi_{\text{LC}}$  分别表示聚合物的折射率和质量分数,  $n_{\text{o}}$  和  $n_{\text{e}}$  表示液晶的寻常光折射率和非常光折射率.

实验中,  $n_{\text{M}}$ ,  $n_{\text{o}}$  和  $n_{\text{e}}$  分别为 1.53, 1.522 和 1.692,  $\phi_{\text{M}}$  和  $\phi_{\text{LC}}$  分别为 0.3 和 0.7, 结合 (2), (3), (4) 式可以计算得到出射激光的中心波长约为 603.4 nm. 实验值为 602.9 nm, 与理论计算值基本一致. 存在微小误差的原因在于: 1) 发生光聚合反应前后, 材料体系的折射率会发生变化<sup>[18,19]</sup>, 估算出的介质平均折射率在计算激光的中心波长时必然会带来误差; 2) 由于测量仪器的局限性, 在测量光束夹角时, 存在一定的误差, 误差约为 0.1°. 如果将此误差引入计算, 可以得到激光输出的中心波长为  $603.4 \pm 1.1$  nm, 实际测量的激光中心波长在理论值的误差允许范围内.

值得注意的是从图 4 中还可以看到另外一个比较弱的激光峰值, 中心波长为 615 nm 左右, 线宽约为 8 nm. 当调节样品的位置使抽运光照射在样品上的非光栅区域时, 此激光谱线依然存在, 而中心波长为 602.9 nm 的谱线却消失, 如图 5(a) 所示, 因此可以判断这个激光谱线是自发辐射放大 (ASE). 产生的原因是抽运光经过柱面镜聚焦后形成了一束长约 10 mm 的狭长的线状光斑, 而液晶/聚合物光栅的面积约为 8 mm × 8 mm, 抽运光形成的线状光斑必然有一部分照在非光栅区域, 这部分区域产生的自发辐射没有经过液晶/聚合物光栅的反馈作用, 在液晶微滴的散射作用下产生自发辐射放大. 为了验证上面的解释, 做了进一步的实验, 将柱面镜移动减小样品台上形成的线状光斑的长度至 8 mm 以下, 使光斑全部照射在液晶/聚合物光栅区域, 用光谱仪进行探测, 发现自发辐射放大的谱线消失, 只探测到泵浦源的散射光谱和 602.9 nm 的激光光谱. 如图 5(b) 所示.

图 6 是实验测得的激光输出脉冲能量与抽运脉

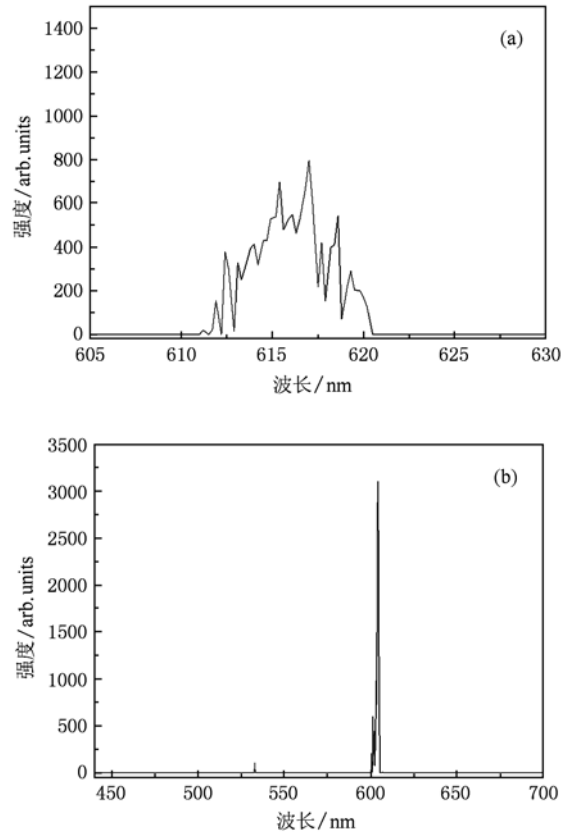


图 5 激光光谱图 (a) 非光栅区域抽运产生的自发辐射放大; (b) 抽运光全部照射在光栅区域时的光谱图

冲能量的关系图. 从图中可以看出当抽运能量超过阈值能量时, 激光输出脉冲能量随着抽运脉冲能量的增大而线性的增大, 激光阈值能量约为 17.3  $\mu\text{J}$ , 与国外的报道相比, 阈值能量有了大幅度的降低. 分析原因可能是由于在于本文在制备染料掺杂液晶/聚合物光栅时采用了在相干光曝光 10 min 的方法将形成光栅和固化这两步结合在一起, 而非国内

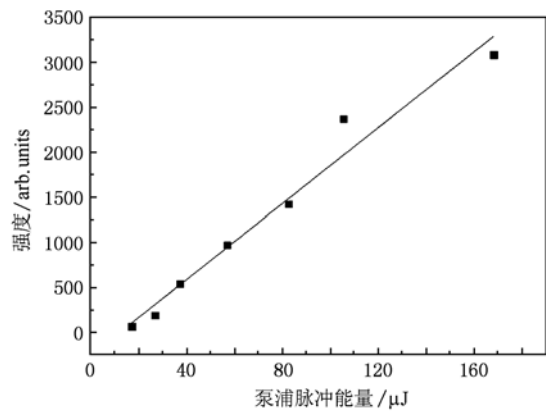


图 6 掺杂 DCM 的液晶/聚合物光栅的激光输出特性曲线

外报道中经常采用的在相干光下曝光 1.5 min 然后在紫外灯下固化 5 min 的方法,这种在相干光曝光 10 min 的方法不仅可以使材料中未反应完的单体进行完全的聚合,而且能够使相分离进行的更加彻底,得到更加规整的相分离光栅结构. 规整的光栅结构可以减小光在材料中的散射损耗,使光栅的反馈进行的更加有效,从而降低了阈值.

#### 4. 结 论

选用 DCM 作为激光染料,将 DCM 与预聚物材料均匀混合,采用在双光束的干涉光场下曝光 10 min 的方法制备了周期为 586 nm 的掺杂 DCM 的透射式液晶/聚合物光栅. 使用 UV-3101 型紫外-

可见-近红外分光光度计和 F-4500 荧光分光光度计测量其吸收谱和荧光发射谱,并用 Nanoscope Dimension 3100 型原子力显微镜对光栅的形貌进行观察,得到周期的测量值为 573 nm,比理论计算值稍小,光栅形貌相对比较规整. 然后用 532 nm 输出的 Nd: YAG 倍频脉冲激光器作为抽运光源对染料掺杂光栅进行侧面抽运,得到了中心波长为 603 nm 的窄线宽、低阈值激光输出. 激光线宽为 1.4 nm、阈值能量约为 17.3  $\mu\text{J}$ . 与国外的报道相比,激光线宽更窄、阈值能量更低. 此外,对实验中出现的自发辐射放大进行了分析,并进行了实验验证. 这种新型的微型激光光源在可调谐激光器、平板显示以及集成光路等领域将有着广阔的应用前景.

- [1] Sutherland R L, Natarajan L V, Tondiglia V P 1993 *Chem. Mater.* **5** 1533
- [2] Wu L, Zhang S W, Song K P, Bayin H Q G, Qi X D, Gao J X 2009 *Optics and Precision Engineering* **17** 1497 (in Chinese) [吴娜,张善文,宋可平,巴音贺希格,齐向东,高键翔 2009 光学精密工程 **17** 1497]
- [3] Tan X, Liu Y, Xu X D, Hong Y L, Fu S J 2009 *Optics and Precision Engineering* **17** 33 (in Chinese) [谭鑫,刘颖,徐向东,洪义麟,付绍军 2009 光学精密工程 **17** 33]
- [4] Sutherland R L, Natarajan L V, Tondiglia V P, Bunning T J, Adams W W 1994 *Appl. Phys. Lett.* **64** 1074
- [5] Domash L H, Crawford G P, Ashmead A C, Smith R T, Popovich M M, Storey J 2000 *SPIE* **4107** 46
- [6] Tanaka K, Kato K, Date M 1999 *Jpn. J. Appl. Phys.* **38** 277
- [7] Zheng Z G, Li W C, Liu Y G, Xuan L 2008 *Acta Phys Sin* **57** 7344 (in Chinese) [郑致刚,李文萃,刘永刚,宣丽 2008 物理学报 **57** 7344]
- [8] Li W C, Zheng Z G, Liu Y G, Song J, Xuan L 2010 *Optics and Precision Engineering* **18** 1504 (in Chinese) [李文萃,郑致刚,刘永刚,宋静,宣丽 2010 光学精密工程 **18** 1504]
- [9] Tondiglia V P, Natarajan L V, Sutherland R L, Tomlin D, Bunning T J 2002 *Adv. Mater.* **14** 187
- [10] Sutherland R L, Natarajan L V, Tondiglia V P, Chandra S, Tomlin D, Bunning T J 2002 *Optics Express* **10** 1074
- [11] Dowling J P, Scalora M, Bloemer M J, Bowden 1994 *J. Appl. Phys.* **75** 1896
- [12] Strangi G, Barna V, Caputo R, Luca A D 2005 *Phys. Rev. Lett.* **94** 063903
- [13] Jakubiak R, Bunning T J, Vaia R A, Natarajan L V, Tondiglia V P 2003 *Adv. Mater* **15** 241
- [14] Lucchetta D E, Criante L, Francescangeli O, Simoni F 2004 *Appl. Phys. Lett.* **84** 837
- [15] Hsiao V K S, Lu C, He G S, Pan M, Cartwright A N, Prasad P N, Jakubiak R, Vaia R A, Bunning T J 2005 *Opt. Express.* **13** 3787
- [16] Liu Y J, Sun X W, Shum P, Li H P, Ji W, Zhang X H 2006 *Appl. Phys. Lett.* **88** 061107
- [17] Kogelnik H, Shank C V 1972 *J. Appl. Phys.* **43** 2327
- [18] Zhang B, Liu Y J, Xu K S 2004 *Acta Phys Sin* **53** 1850 (in Chinese) [张斌,刘言军,徐克璠 2004 物理学报 **53** 1850]
- [19] Zhang B, Liu Y J, Jia Y, Xu K S 2003 *Acta Phys. Sin.* **52** 91 (in Chinese) [张斌,刘言军,贾瑜,徐克璠 2003 物理学报 **52** 91]

# Distributed-feedback lasing from dye-doped holographic polymer dispersed liquid crystal transmission grating\*

Deng Shu-Peng<sup>1)2)†</sup> Li Wen-Cui<sup>1)2)</sup> Huang Wen-Bin<sup>1)2)</sup> Liu Yong-Gang<sup>1)</sup> Lu Xing-Hai<sup>1)</sup> Xuan Li<sup>1)</sup>

1) (*State Key Laboratory of Applied Optics, Changchun Institute of Optics, Fine Mechanics and Physics, Chinese Academy of Sciences, Changchun 130033, China*)

2) (*Graduate School of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China*)

(Received 19 July 2010; revised manuscript received 13 August 2010)

## Abstract

In this paper, we report the fabrication of dye-doped holographic polymer dispersed liquid crystal (HPDLC) transmission grating and the property of distributed-feedback lasing from dye-doped HPDLC transmission grating. Under the excitation of a frequency-doubled Nd:yttrium-aluminum-garnet laser operating at a wavelength of 532 nm, optically pumped lasing with narrow linewidth and low threshold was observed from a DCM dye-doped HPDLC transmission grating with the grating period of 586 nm. The results showed that the emitted lasing peak centered at about 603 nm with a full width at half maximum (FWHM) of only 1.4 nm, and the threshold pumping intensity was about 17.3  $\mu\text{J}$ , which is evidently lower than the previously reported values.

**Keywords:** holographic polymer dispersed liquid crystal, distributed-feedback lasing, threshold, full width at half maximum

**PACS:** 61.30.Pq

---

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 60277033, 50473040, 19974046, 59973020), and by the Science Foundation of Jilin Province (Grant No. 20020603).

† E-mail: spdeng0407@gmail.com