

基于全息液晶/聚合物光栅的分布反馈式激光器的波长调谐特性研究*

邓舒鹏¹⁾²⁾ 黄文彬¹⁾²⁾ 刘永刚¹⁾ 刁志辉¹⁾²⁾ 彭增辉¹⁾ 姚丽双¹⁾ 宣丽^{1)†}

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)

(2011年8月26日收到; 2011年10月14日收到修改稿)

首先制备了不同周期的染料掺杂全息液晶/聚合物光栅并进行激光抽运实验, 得到了激光器的调谐曲线, 确定了激光器在 574 nm 到 685 nm 的谱带里均可以实现激光输出, 即激光器具有 110 nm 左右的可调谐范围. 之后, 通过温控仪控制样品的温度, 对周期为 610 nm 的染料掺杂全息液晶/聚合物光栅进行激光抽运, 探测不同温度下的输出激光光谱, 观察到随着温度由 20 °C 升高到 65 °C, 激光器的中心波长由 627.9 nm 减小到 623 nm, 产生了 4.9 nm 的波长蓝移.

关键词: 全息液晶/聚合物光栅, 分布反馈式激光器, 调谐曲线, 波长调谐特性

PACS: 61.30.Gd

1 引言

全息液晶/聚合物 (holographic polymer dispersed liquid Crystal) 光栅是一种利用全息曝光的方法制备的由富液晶层与富聚合物层交替分布形成的周期性结构, 它将聚合物优良的工艺特性和液晶材料光学性质的电/热调谐特性完美的结合在一起, 因此自 1993 年由 Sutherland 等人报道后^[1] 一直是国际研究的热点. 相比于一般的周期性结构^[2-5], 这种在双光束的干涉光场中曝光形成的光栅具有制备方法简易、成本低、易微型化以及优良的电/热调谐特性等优势, 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^[6-13].

近年来, 许多科研工作者开始致力于将全息液晶/聚合物光栅应用于分布反馈式 (DFB) 可调谐激光器领域, 并且取得了一些重要成果. 2003 年 Jakubiak 等人率先从掺有染料香豆素 485 的液

晶/聚合物反射式光栅中观察到了激光现象^[14], 随后 Lucchetta 小组也对基于全息液晶/聚合物反射式光栅的 DFB 激光发射进行了相关研究^[15]. 2005 年, Hsiao 等人深入研究了掺入染料吡咯甲川 580 (pyrromethene 580) 的液晶/聚合物透射式光栅在进行激光抽运时出现的激光现象, 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, 激光强度的变化^[16]. 之后, 刘言军等人报道了基于全息液晶/聚合物光栅的低阈值、窄线宽激光器, 阈值能量为 120 μJ , 线宽为 1.8 nm, 并研究了激光强度随着温度的变化^[17]. 在国内, 本课题组也对基于全息液晶/聚合物光栅的 DFB 激光器的研究结果进行了报道, 激光线宽为 1.4nm、阈值能量约为 17.3 μJ , 与之前国外的报道相比, 阈值能量有了很大幅度的降低^[18]. 然而, 目前尚未有报道对基于全息液晶/聚合物光栅的 DFB 激光器的波长调谐特性进行研究.

本文在之前工作的基础上对基于全息液晶/聚合物光栅的 DFB 激光器的波长调谐特性进行了

* 国家自然科学基金 (批准号: 60277033, 50473040, 19974046, 59973020) 资助的课题.

† E-mail: lcdciomp@gmail.com

较为细致的研究. 首先选用 4-(二氰亚甲基)-2-甲基-6-(4-二甲氨基苯乙烯基)-4H-吡喃 (DCM) 作为激光染料, 制备了不同周期的 DCM 掺杂全息液晶/聚合物光栅并进行激光抽运实验, 通过测试各个样品的输出激光光谱, 得到激光器的调谐曲线, 确定了激光器的波长可调谐范围, 并对实验结果进行了理论分析. 之后通过温控器控制样品的温度, 测试在不同温度下输出激光的光谱, 初步研究了基于全息液晶/聚合物光栅的 DFB 激光器的波长热调谐特性, 并对实验结果进行细致的分析.

2 实验

2.1 染料掺杂液晶/聚合物光栅的制备

制备全息液晶/聚合物光栅的材料体系为液晶/单体共混体系: 预聚物单体选择由北京东方亚科利化工科技有限公司生产的双官能度的邻苯二甲酸二甘醇二丙烯酸酯 (PDDA, 室温下折射率为 $n_m = 1.55$) 和由 Aldrich 公司生产的五官能度的二季戊四醇羟基五丙烯酸酯 (DPHPA, 室温下折射率为 $n_m = 1.49$), 两者以质量分数比 1:1 混合; 液晶材料选用石家庄永生华清液晶有限公司生产的向列相液晶 TEB30A ($n_o = 1.522$, $\Delta n = 0.170$, 清亮点为 61.2°C), 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玫瑰红 (RB)、共引发剂 N-苯基甘氨酸 (NPG)、交联剂 N-乙烯基吡咯烷酮 (NVP), 以及 1 wt% 的激光染料 DCM. 将混合材料在 40°C 下搅拌 24 h, 使其均匀混合.

制备染料掺杂全息液晶/聚合物光栅时, 将预聚物单体注入到由 ITO 导电玻璃制成的样品盒中, 置于双光束干涉光场中进行曝光. 干涉光源选择输出波长为 532 nm 的 Nd:YAG 连续激光器, 曝光时间 10 min , 单束光功率 3.7 mW/cm^2 . 在两束相干光形成的干涉光场中, 预聚物单体在干涉亮区发生定域光聚合反应, 从而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 $9\text{ }\mu\text{m}$, 由隔垫物控制. 光栅区域大小为 $8\text{ mm} \times 8\text{ mm}$.

2.2 激光抽运及测试光路

激光抽运实验的装置示意图如图 1 所示: 抽运光源选择输出波长为 532 nm 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分束棱镜 BS 后分成光强相等的两束光, 其中一束光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.

在进行热调谐实验时, 需要把样品放置在特制的加热台上. 加热台由热电偶加热并由温控仪控制加热台上的温度. 为了保证实验具有较高的精度, 在每次改变样品的温度时, 需要等待 $10\text{--}20\text{ min}$ 直至加热台上近似达到热平衡, 这样实验样品的温度能够尽可能与温控仪设定的温度保持一致.

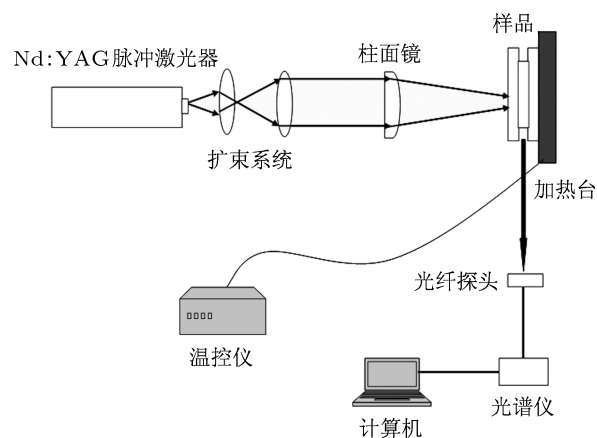


图 1 激光抽运实验及热调谐实验的装置示意图

3 结果及分析

3.1 可调谐范围的测定

根据双光束干涉原理, 干涉条纹间距可由公式 $d = \frac{\lambda}{2 \sin(\theta/2)}$ 计算得到. 其中 λ 表示干涉光的波长, θ 表示两束干涉光的夹角. 在透射式全息液晶/聚合物光栅的制备过程中, 几乎不会出现聚合物收缩对透射光栅周期的影响^[19], 因此光栅周期近似等于干涉条纹的间距. 这样, 我们可以通过控制

双束干涉光的夹角制备出各种不同周期的全息液晶/聚合物光栅。

为了测定激光器的波长可调谐范围, 我们通过调整两束干涉光的夹角分别制备了光栅周期为 550 nm, 560 nm, 586 nm, 610 nm, 630 nm, 680 nm 和 690 nm 的全息液晶/聚合物光栅并进行了激光抽运实验. 利用光谱仪对输出激光的光谱进行探测, 测得的光谱图如图 2 所示. 其中, 周期为 550 nm 和 690 nm 的 DCM 掺杂全息液晶/聚合物光栅在激光抽运过程中没有观察到激光出射. 从图 2 中可以看出: 各个不同周期的 DCM 掺杂全息液晶/聚合物光栅在抽运过程中产生的分布反馈式激光输出分布在 574 nm 到 685 nm 的宽带光谱范围内, 即基于 DCM 掺杂全息液晶/聚合物光栅的 DFB 激光器呈现出了非常宽的可调谐范围, 共有 110 nm 左右. 因此利用 DCM 掺杂全息液晶/聚合物光栅很容易制备出宽波长可调谐范围的可调谐激光器. 需要指出的是: 由于实现精度的限制, 实际的可调谐范围可能比实验中得到的结果略宽一些. 在实验过程中, 由于实验条件有限, 制备的各个染料掺杂光栅的周期间隔较大, 因此对于光栅周期略小于 560 nm 或者略大于 680 nm 的 DCM 掺杂全息液晶/聚合物光栅, 也是有可能出现激光发射的.

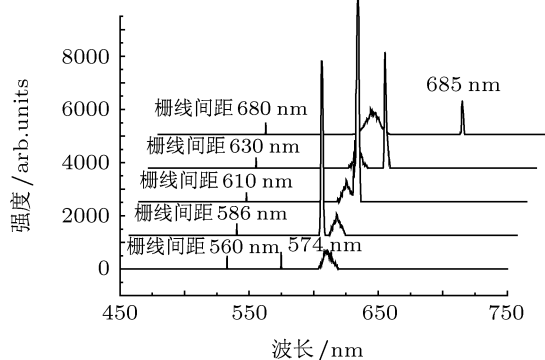


图 2 基于不同周期的 DCM 掺杂液晶/聚合物光栅的激光光谱图

基于染料掺杂全息液晶/聚合物光栅的激光器具有如此宽的可调谐范围, 是由材料的宽带吸收谱和宽带荧光发射谱决定的. 染料掺杂 DCM 的液晶/聚合物光栅的吸收谱与荧光发射谱如图 3 所示, 虚线为材料的吸收谱, 实线为荧光发射谱. 吸收谱由日本 SHIMADZU 公司生产的 UV-3101 型紫外-可见-近红外分光光度计测量, 荧光发射谱由日

本 HITACHI 公司生产的 F-4500 荧光分光光度计测量. 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较宽的吸收带, 而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. 在 520 nm 到 574 nm 之间的光谱区域内, 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; 在超过 685 nm 的光谱区域内, 由于材料的荧光发射谱极其微弱, 在此区域内也很难出现激光. 这就是光栅周期为 550 nm 和 690 nm 的 DCM 掺杂全息液晶/聚合物光栅在激光抽运过程中没有观察到激光出射的本质原因. 而在 574 nm 到 685 nm 之间的光谱区域里, 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. 因此与这个波段对应的周期为 560 nm, 586 nm, 610 nm, 630 nm, 680 nm 的 DCM 掺杂全息液晶/聚合物光栅经过抽运实验均能检测到输出激光光谱.

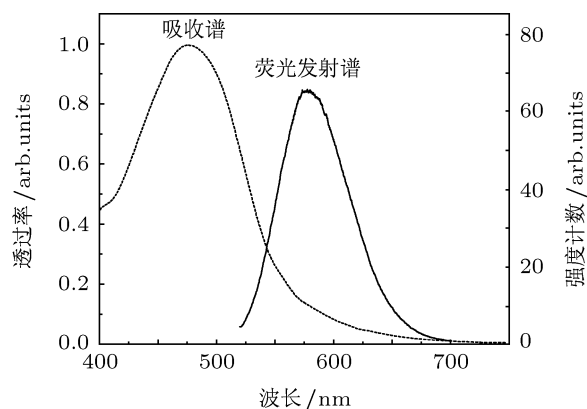


图 3 DCM 掺杂全息液晶/聚合物光栅的吸收谱与荧光发射谱

通过制备大量光栅周期在 560 nm 到 680 nm 之间的全息液晶/聚合物光栅, 并测定不同周期全息液晶/聚合物光栅在抽运过程中产生的输出激光的波长与强度, 可以描绘出基于 DCM 掺杂的全息液晶/聚合物光栅的可调谐曲线, 如图 4 所示. 从图中可以看出: 在输出波长从 574 nm 到 610 nm 的变化过程中, 输出激光的强度逐渐变强直到在输出波长为 610 nm 处达到最大. 之后随着输出波长的增加而减小, 这一现象是由于材料的吸收和荧光发射之

间存在的相互竞争引起的. 在 574 nm 到 610 nm 之间, 材料的吸收逐渐减弱, 荧光发射经历一段时间的增强后有少许减弱 (如图 3), 因此材料的量子效率呈现增加的趋势并在 610 nm 出达到最大; 之后随着波长的增加, 材料吸收的减弱变得非常缓慢, 而荧光发射快速减弱, 材料的量子效率随着波长的增加逐渐减小. 这样就出现了输出激光的强度随着激光中心波长的增加先逐渐增强之后减弱的变化趋势.

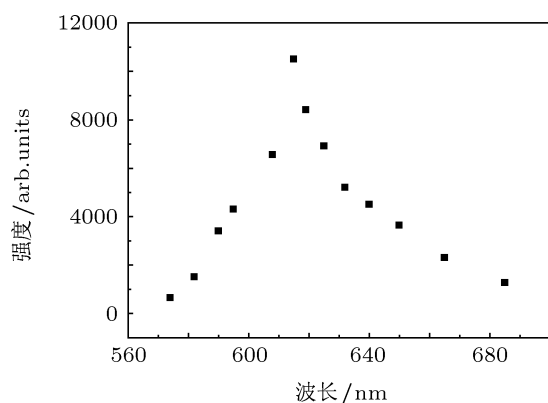


图4 基于 DCM 掺杂液晶/聚合物光栅的 DFB 激光器的可调谐曲线

3.2 激光波长调谐特性的研究

由于液晶材料的折射率具有优良的电/热调谐特性, 因此基于全息液晶/聚合物光栅的器件在电场, 热等外部刺激下很容易实现调谐性能, 基于 DCM 掺杂液晶/聚合物光栅的 DFB 激光器也不例外.

根据 Kogelnik 关于分布反馈式激光器的耦合波理论^[20], DFB 激光的中心波长满足公式

$$\lambda_{\text{las}} = \frac{2n_{\text{eff}}\Lambda}{m}, \quad (1)$$

其中, λ_{las} 表示出射激光的中心波长, Λ 表示液晶/聚合物光栅的周期, m 表示布拉格衍射级次 (本实验中, m 取 3), n_{eff} 表示介质的平均折射率. 由 (1) 式可以看出, DFB 激光器的中心波长与材料的平均折射率成正比. 当液晶层或者聚合物层的折射率发生变化时, 材料的平均折射率随之发生变化, 激光中心波长也相应的蓝移或者红移. 因此, 可以采用加热的方法改变液晶的折射率以及聚合物的折射率, 从而实现激光中心波长的热调谐.

实验中, 选取光栅周期为 610 nm 的 DCM 掺

杂全息液晶/聚合物光栅作为样品进行激光热调谐特性的研究. 利用温控仪调节样品的温度, 在不同温度下对样品进行激光抽运实验, 抽运光能量均为 70 μJ , 并用光谱仪探测输出激光的光谱, 得到的结果如图 5 所示.

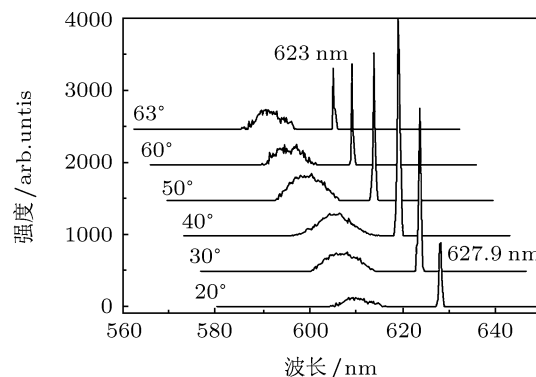


图5 在不同温度下抽运 DCM 掺杂液晶/聚合物光栅所测得的激光光谱

从图 5 中可以看出, 在温度从 20 $^{\circ}\text{C}$ 上升到 65 $^{\circ}\text{C}$ 的过程中, 输出激光的波长从 627.9 nm 减小到 623 nm, 产生了 4.9 nm 的蓝移. 产生这一现象的原因是加热使得材料体系的平均折射率减小. 一方面, 随着温度的升高, 液晶的平均折射率随之逐渐减小^[21], 并且在清亮点 62 $^{\circ}\text{C}$ 处发生相变, 由向列相转变为各向同性相, 液晶的折射率将进一步减小. 另一方面, 对于聚合物材料的折射率来说, 随着温度的升高也会呈现出相应的减小趋势^[22], 这样整个材料体系的平均折射率必将随着温度的升高而减小. 根据 (1) 式可以知道, 激光中心波长与材料体系的折射率成正比, 因此随着温度的升高, 激光中心波长也将减小, 即实验中所观察到的激光中心波长的蓝移.

4 结论

选用 DCM 作为激光染料, 将 DCM 与预聚物材料均匀混合, 采用双光束干涉曝光的方法制备 DCM 掺杂全息液晶/聚合物光栅. 首先制备了不同周期的染料掺杂全息液晶/聚合物光栅并进行激光抽运实验, 确定了激光器在 574 nm 到 685 nm 的谱带里均可以实现激光输出, 即激光器具有 110 nm 左右的可调谐范围, 并且得到了激光器的调谐曲线以及激光出射强度随激光中心波长的变化关系. 之

后,通过温控仪控制样品的温度,对周期为 610 nm 的染料掺杂全息液晶/聚合物光栅进行激光抽运,探测不同温度下的输出激光光谱,观察到随着温度由 20 °C 升高到 65 °C,激光器的中心波长由 627.9 nm 减小到 623 nm,产生了 4.9 nm 的波长

蓝移,并分析了中心波长的蓝移是由温度升高过程中材料体系折射率的降低引起的.这种新型微型激光器制备简易、容易实现可调谐输出,在激光测距、平板显示以及光通讯等领域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] Bayin H X G, Shao X X, Cui J C, Li W H, Qi X D 2011 *Opt. Precis. Eng.* **19** 56 (in Chinese) [巴音贺希格,邵先秀,崔继承,李文昊,齐向东 2011 光学精密工程 **19** 56]
- [3] Cui N D, Liang J Q, Liang Z Z, Zhou J W, Ning Y Q, Wang W B 2010 *Opt. Precis. Eng.* **18** 2549 (in Chinese) [崔乃迪,梁静秋,梁中翥,周建伟,宁永强,王维彪 2010 光学精密工程 **18** 2549]
- [4] Tang Y G, Song N, Bayin H X G, Cui J C, Chen J Y 2010 *Opt. Precis. Eng.* **18** 1989 (in Chinese) [唐玉国,宋楠,巴音贺希格,崔继承,陈今涌 2010 光学精密工程 **18** 1989]
- [5] He J, Zhou Z, Dong H J, Zhang G Y, Ou J P 2010 *Opt. Precis. Eng.* **18** 2339 (in Chinese) [何俊,周智,董惠娟,张广玉,欧进萍 2010 光学精密工程 **18** 2339]
- [6] Sutherland R L, Natarajan L V, Tondiglia V P, Bunning T J, Adams W W 1994 *Appl. Phys. Lett.* **64** 1074
- [7] Domash L H, Crawford G P, Ashmead A C 2000 *SPIE* **4107** 46
- [8] Tanaka K, Kato K, Date M 1999 *Jpn. J. Appl. Phys.* **38** 277
- [9] 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]
- [10] Deng S P, Li W C, Huang W B, Liu Y G, Lu X H, Xuan L 2011 *Acta Phys. Sin.* **60** 086103 (in Chinese) [邓舒鹏,李文萃,黄文彬,刘永刚,鲁兴海,宣丽 2011 物理学报 **60** 086103]
- [11] Zhang B, Liu Y J, Xu K S 2004 *Acta Phys. Sin.* **53** 1850 (in Chinese) [张斌,刘言军,徐克璿 2004 物理学报 **53** 1850]
- [12] 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,徐克璿 2003 物理学报 **52** 91]
- [13] Li W C, Zheng Z G, Liu Y G, Song J, Xuan L 2010 *Opt. Precis. Eng.* **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]
- [14] Jakubiak R, Bunning T J, Vaia R A, Natarajan L V, Tondiglia V P 2003 *Adv. Mater.* **15** 241
- [15] Lucchetta D E, Criante L, Francescangeli O, Simoni F 2004 *Appl. Phys. Lett.* **84** 837
- [16] Hsiao V K S, Lu C, He G S 2005 *Opt. Express.* **13** 3787
- [17] Liu Y J, Sun X W, Shum P 2006 *Appl. Phys. Lett.* **88** 061107
- [18] Deng S P, Li W C, Huang W B, Liu Y G, Lu X H, Xuan L 2011 *Acta Phys. Sin.* **60** 056102 (in Chinese) [邓舒鹏,李文萃,黄文彬,刘永刚,鲁兴海,宣丽 2011 物理学报 **60** 056102]
- [19] Qi J 2003 *Ph. D. Dissertation* (Rhode Island: Brown University)
- [20] Kogelnik H, Shank C V 1972 *J. Appl. Phys.* **43** 2327
- [21] Li J, Gauza S, Wu S T 2004 *J. Appl. Phys.* **96** 19
- [22] Zhu X L, Lo D 2001 *J. Opt. A: Pure Appl. Opt.* **3** 225

Wavelength tunable properties for distributed feedback lasing from dye-doped holographic polymer dispersed liquid crystal transmission grating*

Deng Shu-Peng¹⁾²⁾ Huang Wen-Bin¹⁾²⁾ Liu Yong-Gang¹⁾ Diao Zhi-Hui¹⁾²⁾
Peng Zeng-Hui¹⁾ Yao Li-Shuang¹⁾ Xuan Li^{1)†}

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

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

(Received 28 August 2011; revised manuscript received 14 October 2011)

Abstract

In this paper, we study the wavelength tunable properties for distributed-feedback lasing from 4-(dicyanomethylene)-2-methyl-6-(4-dimethylaminostyryl)-4H-pyran (DCM) dye-doped holographic polymer dispersed liquid crystal grating. By preparing and pumping the DCM-doped HPDLC gratings with various grating spacings, we depict the tuning curve of the distributed-feedback lasing and confirm that only in a range from 574 nm to 685 nm, the lasing action can be observed. Then, we adjust the temperature of the sample and measure the lasing spectrum from the DCM-doped holographic polymer dispersed liquid crystal grating with a grating period of 610nm. There is an obvious 4.9 nm blueshift from 627.9 nm to 623 nm for the lasing wavelength with the temperature increasing from 20 °C to 65 °C.

Keywords: holographic polymer dispersed liquid crystal grating, distributed-feedback laser, tuning curve, wavelength tunable properties

PACS: 61.30.Gd

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 60277033, 50473040, 19974046, 59973020).

† E-mail: lcdciomp@gmail.com