# 基于透射式液晶/聚合物光栅的分布 反馈式激光器的研究<sup>\*</sup>

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 μJ,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

©2011 中国物理学会 Chinese Physical Society

http://wulixb.iphy.ac.cn

甲酸二甘醇二丙烯酸酯 (PDDA,室温下 $n_{\rm D}$ =1.55, 由北京东方亚科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 $n_{\rm D}$ =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 ( $n_{\rm o}$ =1.522,  $\Delta n$ =0.170,清亮点为61.2 °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 (Nvinyl 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 °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 mW/cm<sup>2</sup>.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 μm,由隔垫物控制.光栅区域大 小为 8 mm × 8 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 8ns,重复频率为 10Hz,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 0.5mm、长为 10mm. 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:

$$\Lambda = \frac{\lambda_{w}}{2\sin(\theta/2)} , \qquad (1)$$

其中  $\Lambda$  表示光栅周期  $\lambda_x$ 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

056102 - 3

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

λ<sub>las</sub>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(m 取 3) , n<sub>eff</sub> 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:

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

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

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

实验中, $n_{\rm M}$ , $n_{\rm e}$  和  $n_{\rm e}$  分别为 1.53,1.522 和 1.692, $\phi_{\rm M}$  和  $\phi_{\rm LC}$ 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±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光栅外的非光栅区域,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 μJ, 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-

 Sutherland R L , Natarajan L V , Tondiglia V P 1993 Chem. Mater. 5 1533

- [2] WuL, Zhang SW, Song KP, Bayin HQG, Qi XD, Gao JX 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 , KatoK , 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 ,

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 μJ. 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.

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、徐克璹 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、徐克璹 2003 物理学报 52 91]

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

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 monuscript 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  $\mu$ 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

<sup>\*</sup> 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).

<sup>†</sup> E-mail: spdeng0407@gmail.com