

染料掺杂液晶激光器的光谱特性研究

李文萃¹, 董刚松¹, 刘艳², 刘永刚²

1. 国网河南省电力公司信息通信公司, 河南 郑州 450052

2. 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, 吉林 长春 130033

摘要 首先从理论上计算出了染料(DCM)掺杂液晶激光器的泵浦阈值能量为 9.2×10^{-7} J, 从而选定了最适合的泵浦光源, 并在此基础上设计了相应的泵浦光路。通过检测输出激光的光强和波长, 从光栅周期、外加电场两个方面着手对激光器的输出光谱进行了特性研究, 结果表明, 通过改变光栅周期就可以实现出射激光波长在 100 nm 范围内(585~685 nm)的调谐, 符合理论计算值。与此同时, 通过施加外加电场也可以实现出射波长的调谐, 虽然调谐范围较小, 但是也实现了输出激光强度的调谐, 强度调谐幅度高达 90.2%。染料掺杂液晶激光器的波长和光强双向可调谐特性, 大大拓展了其在全光网络通信的应用前景。但是, 当电场从 $0 \text{ V} \cdot \mu\text{m}^{-1}$ 增加到 $20 \text{ V} \cdot \mu\text{m}^{-1}$ 时, 出射激光的线宽也从 0.4 nm 增加到了 1.5 nm, 在激光器的可调谐应用中应注意线宽的变化。

关键词 液晶激光器; 染料掺杂; 光谱特性

中图分类号: O753.2

文献标识码: A

DOI: 10.3964/j.issn.1000-0593(2018)10-3273-05

引言

基于染料掺杂液晶光栅的分布式反馈(distributed feedback, DFB)激光器具有体积小、质量轻、价格低廉、易于集成等优点, 并且光栅通过一步曝光法就可以制备而成, 制备方法非常简单, 单纯依靠改变光栅周期就可以在大范围内实现波长的改变; 不仅如此, 由于液晶材料的介入又实现了激光器的电场调谐性和温度调谐性, 使得在不改变器件本身的前提下, 可以对激光器输出激光波长和输出激光强度进行调制, 所以近年来, 染料掺杂液晶激光器受到国内外学者的广泛关注^[1-3], 在光纤通信、有线电视中的并行光互连、高速光交换系统以及生物医学方面有着极其重要的应用前景^[4-5]。本工作从光栅周期、外加电场两个方面着手对激光器进行了特性研究, 研究结果表明, 通过改变光栅周期就可以实现出射激光波长在 100 nm 范围内的调谐。与此同时, 通过施加外加电场也可以实现出射波长的调谐, 虽然调谐范围较小, 但是同时也实现了输出激光强度的调谐, 强度调谐幅度高达 90.2%。

1 泵浦阈值能量

染料分子中与激光产生相关的是一种四能级系统内各能

级之间的电子跃迁, 这些能级分为单一态和三重态结构, 要想计算染料掺杂液晶激光器的泵浦阈值能量, 首先要知道染料的激光速率方程为

$$\frac{dN_1(t)}{dt} = \sigma_a(\nu_p)I(\nu_p)N_0 + \sigma_a(\nu)IN_0 - \sigma_e(\nu)IN_1 - K_{ST}N_1 - \frac{N_1}{\tau_f} \quad (1)$$

$$\frac{dI(t)}{dt} = \sigma_e(\nu)IN_1 + E(\nu)\frac{N_1}{\tau_{fc}} - \sigma_a(\nu)IN_0 - \sigma_T(\nu)IN_T - \frac{I}{\tau_c} \quad (2)$$

其中, 式(1)右边第一项为吸收泵浦光后 S_0 向 S_1 跃迁的粒子数, 第二项为吸收染料激光后由 S_0 受激吸收跃迁到 S_1 的粒子数, 第三项为 S_1 产生受激辐射的粒子数, 第四项为 S_1 向三重态 T_1 跃迁的粒子数, 第五项为 S_1 自发辐射的粒子数; 式(2)右边第一项为受激辐射引起的光强增加, 第二项为自发辐射引起的光强增加, 第三项为受激吸收引起的光强减少, 第四项为三重态 T_1 向 T_2 跃迁引起的光强减少, 第五项为由于谐振腔的损耗引起的光强减少。

对纳秒级的脉冲激光泵浦, 其自发辐射和三重态影响的非常小, 可以忽略不计, 那么式(2)可简化为

$$\frac{dI(t)}{dt} = I\sigma_e(\nu)N_1 - I\sigma_a(\nu)N_0 \quad (3)$$

收稿日期: 2017-10-30, 修订日期: 2018-03-19

基金项目: 国家自然科学基金项目(61377032)资助

作者简介: 李文萃, 女, 1984年生, 国网河南省电力公司信息通信公司高级工程师

e-mail: elf8650@163.com

为了实现激光的增益放大,则需要有: $\frac{dI(t)}{dt} > 0$, 即

$$\frac{N_1}{N_0} > \frac{\sigma_a(\nu)}{\sigma_e(\nu)} = \exp\left[-\frac{h(\nu_0 - \nu)}{kT}\right] \quad (4)$$

$$\frac{N_{th}}{N_{tot}} > \frac{\sigma_a(\nu)}{\sigma_e(\nu)} = \frac{\exp\left[-\frac{h(\nu_0 - \nu)}{kT}\right]}{1 + \exp\left[-\frac{h(\nu_0 - \nu)}{kT}\right]} \quad (5)$$

在这里, N_{tot} 为泵浦的总粒子数, N_{th} 为阈值粒子数, N_0 为处于基态的粒子数。

由于激光染料 DCM 的值 $h(\nu_0 - \nu)$ 处于 0.1~0.3 eV 范围, 若取 $h(\nu_0 - \nu) = 0.18$ eV; 可得出 $N_{th}/N_0 = 1 \times 10^{-3}$; 即想要达到阈值, 必须有 0.1% 的粒子数被激发。

由于 $N_{th} \ll N_{tot}$, 可得出 $N_{th}/N_0 = N_{th}/N_{tot} = 1 \times 10^{-3}$ 。

在这里三重态吸收少之又少, 基态受激吸收, 所以式(1)式也可表达为

$$\frac{dN_1(t)}{dt} = \sigma_a(\nu_p) I(\nu_p) N_0 - \frac{N_1}{\tau_f} \quad (6)$$

当粒子处于稳定状态时, $\frac{dN_1(t)}{dt} = 0$, 则泵浦阈值可得

$$I_{th}(\nu_p) = \frac{N_{th}}{\tau_f \sigma_a(\nu_p) N_0} \quad (7)$$

其泵浦阈值功率为

$$P_{th}(\nu_p) = I_{th}(\nu_p) A h c / \lambda \quad (8)$$

对激光染料 DCM, 其吸收截面为 $4 \times 10^{-17} \text{ cm}^{-2}$, 受激发 S1 的寿命 $1 \text{ ns} = 10^{-9} \text{ s}$, 设 $N_{th}/N_0 = 1 \times 10^{-3}$, 则有 $I_{th}(\nu_p) = 2.5 \times 10^{22} \text{ 光子} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}$, 又泵浦面积为 1 mm^2 ($0.1 \text{ mm} \times 10 \text{ mm}$), 所以计算出泵浦阈值功率为 92.9 W, 对脉冲宽度为 10 ns 的脉冲激光器来说, 阈值能量为 $9.2 \times 10^{-7} \text{ J}$ 。

2 实验部分

液晶激光器的主体材料为向列相液晶 TE30A ($\Delta n = 0.1703$), 和官能度为 3.5 的预聚物, 其中预聚物为具有五官能度的二季戊四醇羟基五丙烯酸酯 (DPHPA) 和具有双官能度邻苯二甲酸二甘醇二丙烯酸酯 (PDPA) 两者以一定的比例混合制备而成, 掺杂的染料为 DCM (4-(二氰亚甲基)-2-甲基-6-(4-二甲氨基苯乙烯基)-4H-吡喃 from Aldrich), 化学结构如图 1 所示, 其分子式 $\text{C}_{19}\text{H}_{17}\text{N}_3\text{O}$, 分子量 303.36, 嫩红色有光泽结晶, 易溶于二甲基亚砷和苯甲醇, 熔点 $210 \sim 212 \text{ }^\circ\text{C}$ 。将上述所有材料均匀混合后注入 $10 \text{ } \mu\text{m}$ 厚的液晶盒内, 置于双光束干涉光场下曝光 (曝光光强为 $3.6 \text{ mW} \cdot \text{cm}^{-2}$), 光源为 532 nm 的 Nd:YAG 激光器, 曝光时间 6 min, 单束光功率 $4.0 \text{ mW} \cdot \text{cm}^{-2}$ 。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, 即可得到染料掺杂液晶激光器件^[6-9]。

由于上节计算得出激光器的阈值能量为 $9.2 \times 10^{-7} \text{ J}$, 实验选用输出波长 532 nm、脉冲宽度为 8 ns, 重复频率为 1~10 Hz, 输出能量在 $1 \text{ } \mu\text{J} \sim 10 \text{ mJ}$ 范围内的 Nd:YAG 倍频脉冲激光器作为泵浦激光器。实验泵浦光路如图 2 所示。将制备好的染料掺杂液晶激光器件放置在图 2 中样品的位置进

行泵浦实验。当激光光斑 (尺寸大约为宽 0.4 mm、长为 8 mm) 聚焦到样品上时, 激光染料 DCM 吸收激光能量产生自发辐射, 在周期性光栅的作用下进行选频、放大, 最终输出 DFB 激光, 根据其工作原理, 产生的 DFB 激光平行于光栅方向, 因此将光谱仪的接收探头对准样品方向便可以对激光输出进行观察, 分析研究其输出激光特性。

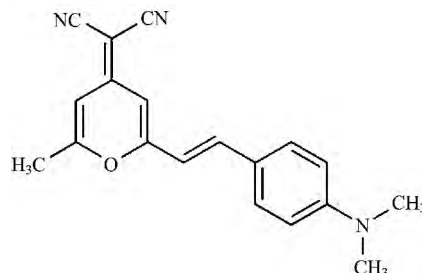


图 1 DCM 的化学结构

Fig 1 Chemical structure of DCM

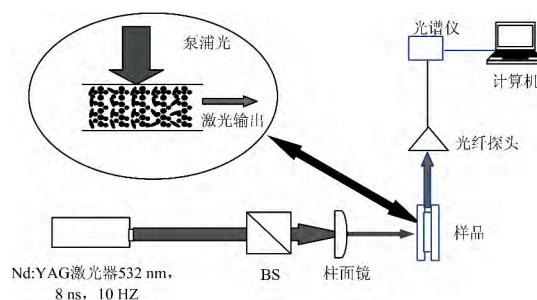


图 2 激光泵浦实验的装置示意图

Fig 2 Schematic diagram of laser pump experiment

3 结果与讨论

3.1 电场调谐特性

以往的研究表明液晶光栅具有明显的电场调谐作用^[10]。染料 DCM 的添加并没有影响染料掺杂液晶光栅的电场调谐特性。如图 3 所示, 当电压从 $0 \text{ V} \cdot \mu\text{m}^{-1}$ 增加到 $25 \text{ V} \cdot \mu\text{m}^{-1}$ 时, 衍射效率分别为以前的 8.9% 和 8.7%。只是添加 DCM 后的光栅随着电压的增加其衍射效率变化的速度相对

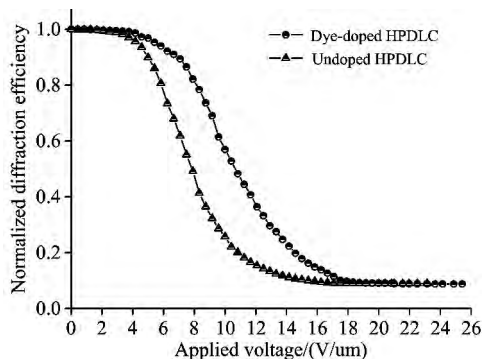


图 3 染料掺杂液晶激光器的光电特性

Fig 3 Electro-optical properties of dye doped liquid crystal laser

于原来的光栅有所减小,也就是说添加 DCM 后的光栅阈值电压高有所增高。

对染料掺杂 HPDLC 光栅进行电场调谐实验,在光栅泵浦的过程中加上电场,然后在光栅的矢量方向进行出射光的探测。得出的不同电场条件下出射光的谱线图,如图 4 所示。

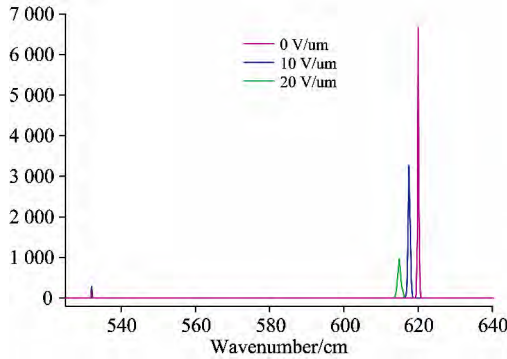


图 4 不同电场条件下出射激光的光谱图
Fig 4 The spectra of the laser under different electric field conditions

从图中可以看出,当没有外加电场时,出射的激光强度最大,其中心波长在 620 nm,随着外加电场的增加,出射波长出现蓝移现象,当电压加到 $10 \text{ V} \cdot \mu\text{m}^{-1}$ 时,中心波长变为 617.5 nm,激光强度几乎减小到原来的 50%。当电场进一步增加到 $20 \text{ V} \cdot \mu\text{m}^{-1}$ 时,中心波长变为 614.9 nm,相对于不加电场时减小了 5.1 nm,其出射光强也进一步减小。当电场增加到 $25 \text{ V} \cdot \mu\text{m}^{-1}$ 时,其出射光强减小到不加电场情况下的 9.8%,也就是说,通过施加外部电场,实现了输出激光强度的调节,强度调节幅度高达 90.2%。

随着外加电场的增加,液晶区域和聚合物区域的折射率差值 Δn 逐步变小,光栅的周期性结构慢慢消失,激光能量就随之减少。在此所用的液晶是向列相液晶 TEB30A,其寻常光折射率 $n_o = 1.52$ 。由于液晶分子是平行于液晶基板排列的,所以在没有电场的情况下,液晶分子的折射率表现为非常光折射率 $n_e = 1.69$ 。外加电场逐步增加,液晶分子慢慢被驱动沿电场方向排列,其折射率表现为非常光折射率 $n_o = 1.52$,这与液晶(TEB30A)的寻常折射率 $n_o = 1.53$ 非常接近。实验中聚合物的折射率为 1.53,当外加场由 $0 \sim 25 \text{ V} \cdot \mu\text{m}^{-1}$ 变化时,液晶区域和聚合物区域的折射率差值由 $\Delta n = 0.16$ 减小到了 $\Delta n < 0.01$,聚合物与液晶区域界面不清晰,周期性结构不明显,激光能量就随之减少。

同时,随着液晶区域折射率的改变,整个光栅的折射率也有所改变,所以出射波长出现蓝移现象。如图 5(a)所示,当电场增加到 $25 \text{ V} \cdot \mu\text{m}^{-1}$ 时,其中心波长减小到 614 nm,相对于不加电场减小了 6 nm。

美国的 Hsiao 给出了基于 HPDLC 光栅的 DFB 激光器的出射激光线宽 $\Delta\lambda$ 满足

$$\frac{\Delta\lambda}{\lambda} \approx \left(\frac{\lambda}{4\pi\Delta nL} \right) \times \text{Ln}(G)$$

其中, λ 是泵浦光波长, L 是增益长度, n 是光栅折射率, Δn 是折射率调制度。由上式可以看出,为了得到一个窄的激光

线宽 $\Delta\lambda$ 需要大的折射率差或者大的增益长度。

当外加电场逐步增加时,光栅的折射率调制度逐渐减小,聚合物与液晶区域界面不清晰,周期性结构不明显,所以线宽也会随之增加。如图 5(b)所示,当电场从 $0 \text{ V} \cdot \mu\text{m}^{-1}$ 增加到 $20 \text{ V} \cdot \mu\text{m}^{-1}$ 时,出射激光的线宽也从 0.4 nm 增加到了 1.5 nm。

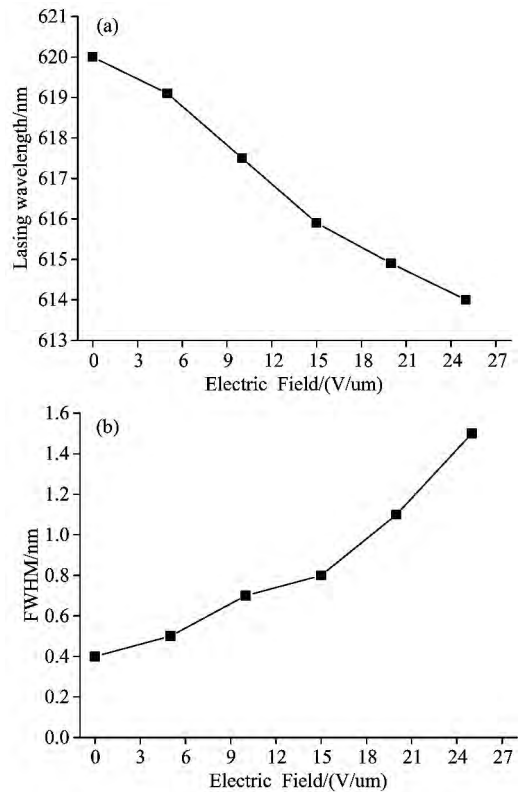


图 5 不同电场条件下出射激光的变化曲线图
(a): 出射波长; (b): 出射线宽

Fig 5 The variation of the laser beam under different electric field conditions
(a): Wavelength; (b): Line width

3. 2 光栅周期调谐特性

为了研究光栅周期常数对出射激光特性的影响,制备了不同周期常数的光栅,其周期分别为 373, 377, 385, 394, 420, 432 和 438 nm。在脉冲激光泵浦下,泵浦能量为 $40 \mu\text{J} \cdot \text{cm}^{-2}$ 得到的出射激光的中心波长分别为 585.7, 590.2, 602.9, 620.2, 658.4, 673.0 和 683.3 nm,如图 6 所示。我们可以看出:当光栅周期慢慢大时,出射激光的光强先是变大,然后又慢慢变小。580 nm 或是 680 nm 附近的出射激光,其发光强度比较低,而且光谱特性不好,较多分支。输出强度最高的是 640 nm。而且,当光栅周期由 373 nm 到 438 nm,增大了 65 nm,对应的 DFB 激光器出射激光的中心波长从 585.7 nm 变到 683.3 nm,覆盖将近 100 nm,如表 1 所示。由此可以发现,出射激光的波长对光栅周期非常“敏感”,光栅周期改变几纳米就有可能造成出射激光波长十几纳米的改变。因此,基于 HPDLC 光栅的 DFB 激光器要求在 HPDLC 光栅的制备过程对周期控制精度很高。

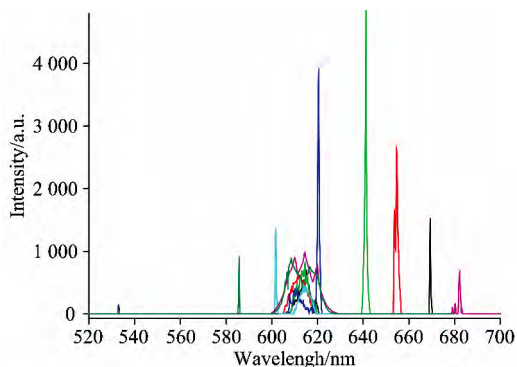


图 6 基于不同周期光栅的 DFB 激光器出射光谱图

Fig 6 DFB laser emission spectra based on different grating

表 1 基于不同周期光栅的 DFB 激光器
出射波长实验值与理论值的对比Table 1 The experimental and theoretical values of DFB
laser wavelength based on different gratings

编号	光栅周期/nm	出射波长/nm	理论计算值/nm	误差/nm	误差百分比/%
1	373	585.7	576.3	9.4	1.6
2	377	590.2	582.5	7.7	1.3
3	385	602.9	594.8	8.1	1.4
4	394	620.2	608.7	11.5	1.9
5	420	658.4	648.9	9.5	1.5
6	432	673.0	667.4	5.6	0.8
7	438	683.3	676.7	6.6	1.0

结合公式 $\lambda_{\text{las}} = \frac{2n_{\text{eff}}\Lambda}{m}$, 通过已知的光栅周期, 可以计算

得到出射激光的中心波长分别为: 576.3, 582.5, 594.8,

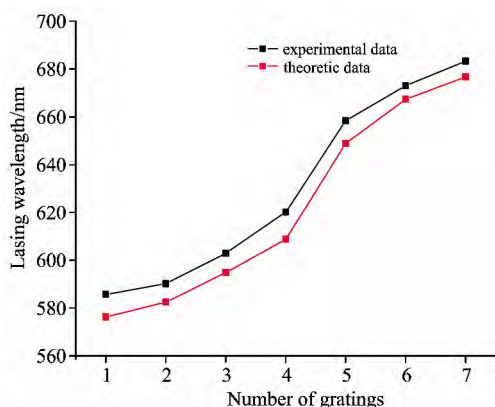


图 7 基于不同周期光栅的出射波长

Fig 7 The output laser wavelength for different gratings

608.7, 648.9, 667.4 和 676.7 nm, 实验值与理论值基本上是一致的。如图 7 所示, 实验数据和理论计算数据曲线的走向是一致的, 只不过理论计算值与实验值存在 7~11 nm 的差值, 这些差异并没有规律可循, 是随机的。误差百分比最大不超过 2%。出射激光中心波长实验数据与理论计算值存在微小误差的原因, 主要是由于样品的折射率在干涉光场中曝光前后存在细微的变化, 如果将此因素引入计算, 实际测量的激光中心波长在理论值的误差允许范围内。

也制备了周期为 368 和 445 nm 的液晶光栅, 按照公式 $\lambda_{\text{las}} = \frac{2n_{\text{eff}}\Lambda}{m}$ 计算, 其出射波长的理论值分别为: 568.6 和 687.5 nm。然而在实验中, 无论泵浦激光的能量有多大, 除了激光染料的自发辐射放大 (ASE) 之外, 都没有发现有激光出射, 也就是说低于 580 nm 或是高于 685 nm 波长的激光很难出射, 分析认为这是由染料本身的特性决定的, 最重要的原因是被激光染料二次重新吸收, 如图 8 所示, 染料的吸收范围为 400~580 nm, 荧光发射范围在 550~685 nm, 所以激光只可能在 580~680 nm 之间的光谱区域里产生, 而超过 680 nm 或是低于 580 nm, 则很难产生增益, 因此无论怎么加大泵浦能量, 都无法得到激光输出。

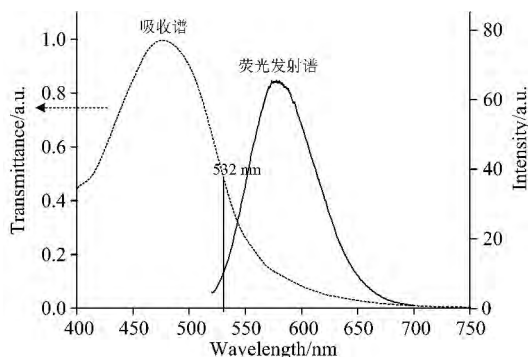


图 8 掺杂 DCM 的 HPDLC 光栅的吸收谱与荧光发射谱

Fig 8 The absorption and fluorescence emission
spectra of HPDLC gratings doped DCM

4 结论

不仅从理论上分析了染料掺杂液晶激光器的泵浦阈值能量, 而且从光栅周期、外加电场两个方面着手对激光器进行了特性研究, 结果表明, 通过改变光栅周期就可以实现出射激光波长在 100 nm 范围内的调谐; 与此同时, 通过施加外加电场也可以实现出射波长的调谐, 虽然调谐范围较小, 但是同时也实现了输出激光强度的调谐, 强度调谐幅度高达 90.2%。

References

- [1] DIAO Zhi-hui, HUANG Wen-bin, DENG Shu-peng, et al (刁志辉, 黄文彬, 邓舒鹏, 等). Acta Phys. Sin. (物理学报), 2013, 62(3): 034202.
- [2] Zharkova G M, Osipov V V, Platonov V V, et al. Russian Physics Journal, 2016, 59(8): 1295.
- [3] Amosova L P, Venediktov V Y. Optics and Spectroscopy, 2016, 121(5): 665.

- [4] LI Wen-cui, ZHANG Hao, LÜ Jing-xian, et al(李文萃, 张浩, 吕静贤, 等). Bulletin of Science and Technology(科技通报), 2015, 11(31): 135.
- [5] LI Wen-cui, YUAN Fang, LÜ Jing-xian, et al(李文萃, 远方, 吕静贤, 等). Information & Communications(信息通信), 2014, 5: 205.
- [6] NI Ming-li, PENG Hai-yan, XIE Xiao-lin(倪名立, 彭海炎, 解孝林). Acta Polymerica Sinica(高分子学报), 2017, 10: 132.
- [7] DENG Shu-peng, LI Wen-cui, HUANG Wen-bin, et al(邓舒鹏, 李文萃, 黄文彬, 等). Acta Phys. Sin. (物理学报), 2011, 60(8): 086103.
- [8] Loiko V A, Zyryanov V Y. Optics and Spectroscopy, 2016, 1: 1320.
- [9] LIU Li-juan, HUANG Wen-bin, DIAO Zhi-hui, et al(刘丽娟, 黄文彬, 刁志辉, 等). Acta Phys. Sin. (物理学报), 2014, 63(19): 194202.
- [10] FAN Fang, XIE Yi-jun, FAN Zhi-xin(樊芳, 解一军, 范志新). Polymer Materials Science & Engineering(高分子材料科学与工程), 2015, 7: 87.

Study on the Spectrum Characteristics of Dye Doped Liquid Crystal Laser

LI Wen-cui¹, DONG Gang-song¹, LIU Yan², LIU Yong-gang²

1. State Grid Henan Electric Power Corporation, Information & Telecommunication Company, Zhengzhou 450052 China

2. State Key Laboratory of Applied Optics, Changchun Institute of Optics, Fine Mechanics and Physics, Chinese Academy of Sciences, Changchun 130033, China

Abstract In this paper, the energy of pump threshold value of DCM doped liquid crystal laser is theoretically calculated (9.2×10^{-7} J). In addition, the most suitable pump light source are selected, and the corresponding pump experiment is designed. The characteristics of the laser are studied through detecting the light intensity and wavelength of the output laser. The results show that the laser wavelength can be tuned in the range of 100 nm (585~685 nm) by changing the grating period which accords with the theoretical calculation. In the meanwhile, the laser wavelength can be tuned by applying the applied electric field. What's more, the output laser strength can also be switchable, and the intensity switchable ability can reach 90.2%. The application prospect of dye doped liquid crystal laser in the all optical network communication field is greatly expanded because of the switchable ability. However, when the electric field increases from 0 to 20 V · μm^{-1} , the line width of the laser is increased from 0.4 to 1.5 nm. The change of line width should be noted in the tunable application of dye doped laser.

Keywords Liquid crystal laser; Dye doped; Spectrum characteristics

(Received Oct. 30, 2017; accepted Mar. 19, 2018)