

二维微管中聚合物分散液晶的随机激光行为研究

安妮拉·艾哈迈德 戴海涛

(天津大学理学院, 天津 300355)

摘 要 聚合物分散液晶具有可调控的光散射能力, 在光开关、智能窗户等领域具有广泛的应用前景。本文主要研究在微管中制备的聚合物分散液晶的随机激光特性, 重点研究了不同的聚合物体系以及不同的微管直径中随机激光的出射特性。实验发现, 直径更小的微管能够实现较低阈值和更窄的线宽的随机激光辐射。本实验的结果为进一步提升微管随机激光性能, 提升集成光路中激光光源的性能提供帮助。

关键词 随机激光; 聚合物分散液晶; 微管激光

THE STUDY OF RANDOM LASING BEHAVIOR FROM POLYMER DISPERSED LIQUID CRYSTAL IN 2D CAPILLARY

AHMAD Aneela DAI Haitao

(School of Science, Tianjin University, Tianjin 300355)

Abstract The polymer dispersed liquid crystal (PDLC) can tune the optical scattering, and has a wide application prospect in the fields of optical switch, smart windows etc. In this paper, the PDLC was prepared in capillary and the random lasing properties was studied. The emission properties were focused when the materials and radius of capillary were changed. According to experimental results, the random lasing with low threshold and narrow peak can be achieved in capillary with smaller radius. The results of this experiment can further facilitate the improvement of the performance of random lasing from capillary and the properties of laser source in integrating optical circuit.

Key words random lasing; PDLC; capillary laser

激光自从诞生以后在科研、工业应用、医疗以及实际生活中得到了广泛的应用。一般条件下, 产生激光需要活性介质、谐振腔、泵浦源等条件, 尤其是粒子数翻转是产生激光的一个必要条件。随着科技的进步, 激光也出现了多种形式, 比如半导体激光、可调谐的染料激光等。在多种激光器件中, 随机激光是一种特殊的形式。随机激光的光学增益主要是来自于随机介质的多重散射, 在随机分布的强散射纳米颗粒中, 由于后向散射的作用会出现光子态密度的局域增强, 从而出现了受激增益放大的行为。图 1(a) 给出了无序介质中非相干反馈和相干反馈机制示意图, 图 1(b) 则给出了无序介质中

安德森局域反馈机制的示意图。随机激光在信息传递、激光显示以及激光防伪方面具有广泛的应用前景, 因此对于随机激光的研究快速发展。早期对于随机激光的研究主要是集中于强散射纳米颗粒体系^[1-2]。近年来, 研究者发现由于液晶自身分子定向的不规则分布也能形成折射率的随机分布, 进而造成对入射光的散射。因此通过掺杂染料分子, 人们能够在液晶体系中实现随机激光的出射。因为液晶分子可方便地被外界的物理场所影响, 因此出射的随机激光的辐射特性、偏振状态、时间空间相干性等都能够方便地调控。因此, 基于液晶体系的随机激光研究得到了研究者的关注^[3-5]。此

收稿日期: 2021-05-24

通讯作者: 戴海涛, 男, 教授, 主要从事大学物理和光学教学与科研工作, 研究方向液晶光子学, htdai@tju.edu.cn。

引文格式: 艾哈迈德 A, 戴海涛. 二维微管中聚合物分散液晶的随机激光行为研究[J]. 物理与工程, 2022, 32(2): 109-113.

Cite this article: AHMAD A, DAI H T. The study of random lasing behavior from polymer dispersed liquid crystal in 2D capillary[J]. Physics and Engineering, 2022, 32(2): 109-113. (in Chinese)

外,由于基于液晶体系的随机激光行为和基于强散射纳米颗粒的随机激光行为有很大不同,液晶的散射特征非常弱,其中的物理机制涉及到弱散射介质中的光子局域行为,因此也受到研究者广泛的关注。

液晶/聚合物体系也是一种非常有前景的随机激光体系^[6]。液晶/聚合物体系一般有聚合物分散液晶、聚合物稳定液晶等类型。这类体系是在光致相分离的诱导条件下,液晶在聚合物网络结构中形成了随机分布的微滴或者区域,这些液晶微滴或区域会对入射光造成散射,多重散射的效果也能表现出随机激光的行为。尤其是聚合物分散液晶,其中液晶的颗粒比较小,散射比较强,更容易产生随机激光的效应,而且因为聚合物分散液晶体系具有一定的支撑强度,能够在没有外界支撑的条件下构成器件,因而具有较好的应用前景。一般的液晶器件都被制备在平面盒子中,其液晶的锚定条件都和平面的限制条件有关。但是在集成光路中,平面器件因为面积大不容易和光路进行集成,而类光纤或者波导的器件则更容易和光路进行集成。

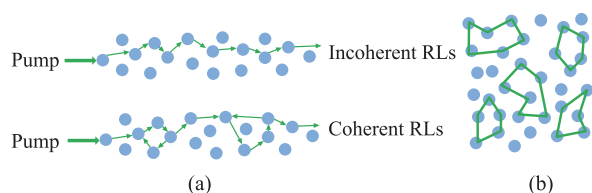


图 1

(a) 光子多重散射反馈机制;

(b) 无序介质中的安德森局域化反馈机制

基于以上的认识,本文主要研究在二维的微管中制备聚合物分散液晶,并研究染料掺杂聚合物分散液晶的随机激光出射特性。研究不同的聚合物分散体系以及微管半径对随机光特性的影响。

1 微管中染料掺杂聚合物分散液晶体系的制备

聚合物分散液晶是由预聚物和液晶混合而成,在曝光条件下,聚合物和液晶发生相分离而构成的。本文中主要采用两种预聚物体系和 E7 液晶进行混合。预聚物 A 体系采用紫外固化胶 NOA65 和 E7 ($n_o = 1.521$, $n_e = 1.746$) 液晶按照 7:3 的比例混合而成。经过毛细作用分别灌入内径为 $100\mu\text{m}$ 和 $300\mu\text{m}$ 的毛细管中,在均匀紫外

光 (395nm) 条件下曝光 3 分钟,曝光强度为 $5\text{mW}/\text{cm}^2$,为了使得样品完全固化,随后在大功率紫外灯下进行了 15 分钟的后固化。预聚物 B 是多种单体组成的聚合物分散液晶体系,主要包括六官能团的二季戊四醇羟基五丙烯酸酯 (DPHPA, 29wt%), 共聚单体交联剂 N-乙基吡咯烷酮 (NVP, 10wt%), 共引发剂 N-苯基甘氨酸 (NPG, 0.8wt%), 光引发剂 (RB, 0.1wt%) 和激光染料 (DCM, 0.1wt%), 这些化学品都来自于西格玛-奥瑞驰公司,向列相液晶 (E7, 31wt%) 购自默克公司,单体邻苯二甲酸二甘醇二丙烯酸酯 (PDDA, 29wt%) 由西亚试剂提供。其曝光条件和聚合物 A 体系的曝光条件相同。上述的曝光条件都是已经在实验室中优化好的制备工艺,能够获得直径分布在 $200\sim 800\text{nm}$ 之间的液晶微滴,且微滴可以构成比较均匀的分散体系。制备的样品在偏光显微镜下的图像,如图 2 所示。从图 2 可以看出形成了均匀散射的聚合物分散样品。

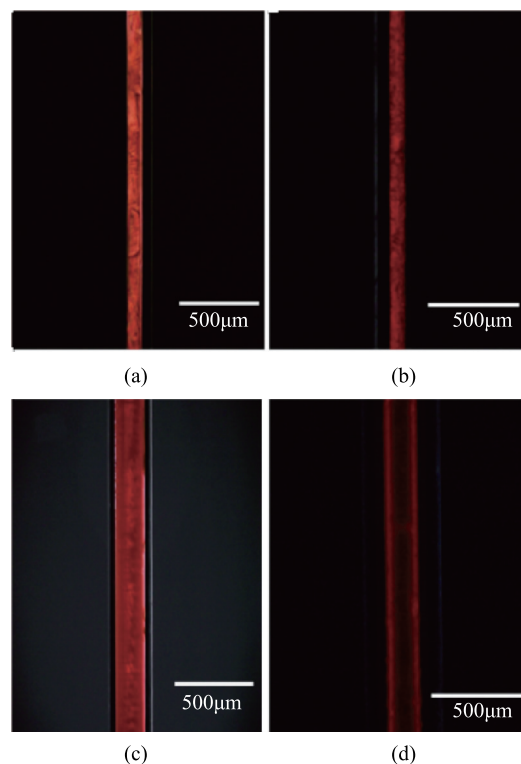


图 2 填充聚合物体系 A 和 B 微管的偏光显微镜图像

(a) 聚合物体系 A, $100\mu\text{m}$; (b) 聚合物体系 B, $100\mu\text{m}$;(c) 聚合物体系 A, $300\mu\text{m}$; (d) 聚合物体系 B, $300\mu\text{m}$

在上述的微管中均掺杂 PM597 的染料,其光谱特征如图 3 所示。其吸收谱范围在 $400\sim 800\text{nm}$,吸收峰为 480nm ,光致发光范围 $550\sim$

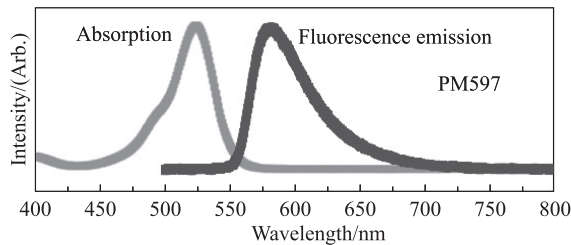


图3 PM597 的吸收谱和光致发光谱

750nm, 发光峰为 615nm, 在 550~700nm 之间有明显的重叠。

2 随机激光特性的研究

2.1 实验装置

在微管中激发随机激光的实验装置如图 4 所示, 主要由纳秒激光器 (Nd:YAG 激光器, 波长 532nm, 脉宽 10ns, 重复频率 10Hz)。从激光器输出的脉冲激光首先通过分束比可达到 1:99 的偏振分光棱镜 (NBS), 选定合适的分束比, 一部分作为泵浦能量激发毛细管样品, 另一部分则作为参考光用能量计记录脉冲能量值 (根据选定的分光棱镜的分束比和能量计的读数, 即可给出对应的泵浦能量值)。由于泵浦光斑的面积相对较大, 为了提高泵浦效率和样品的利用率, 实验中用柱透镜 ($f=20\text{cm}$) 将泵浦光斑聚焦至样品处。出射的随机激光由高分辨率光谱仪 (HR4000 光纤光谱仪, 工作谱宽为 550~660nm, 分辨率为 0.04nm) 采集, 通过对光谱特征的分析, 可以研究随机激光随泵浦脉冲激光变化的特性, 比如随机激光出射的强度、阈值等特性。实验结果中因为在微管中, 所以沿着毛细管轴向探测出射的随机激光。由于毛细管内径的限制, 轴向发射的随机激光强度相对较大易于探测, 其他任意发射角的随机激光也可探测, 比如沿毛细管壁的任意方向。

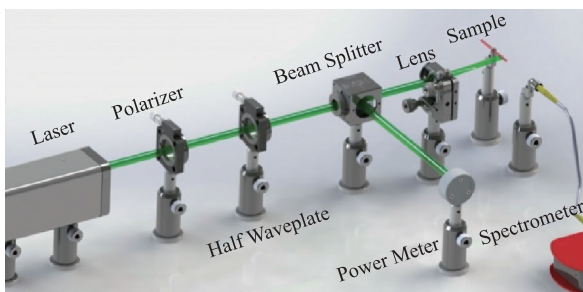


图4 随机激光泵浦和探测装置图

2.2 随机激光出射特性的研究

微管中的 PDLC 在泵浦光的作用下, 如果阈值超过激光的阈值, 则可以产生受激放大辐射, 如图 5 所示。

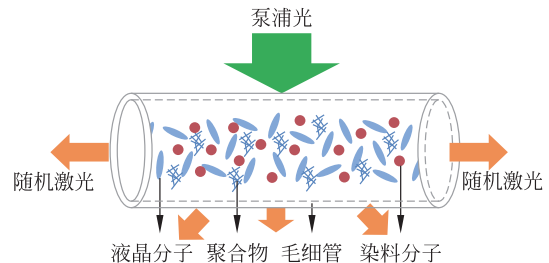


图5 毛细管中随机激光出射示意图

根据光谱仪记录的光谱图即可分析随机激光的特征, 图 6 展示了不同条件下随机激光出射光谱的特征。

由图 6 中可以看出, 毛细管中随机激光出射的特征为整体自发辐射光谱特征之上的一些毛刺。这些毛刺的位置是随机分布的。在初始泵浦光的能量小于阈值时, 微管中辐射的光谱仅仅表现出光致发光的光谱。随着泵浦能量的逐渐增加, 在超过阈值时, 在自发辐射谱上出现了许多尖锐的峰值, 这些峰值即是随机激光的辐射峰。因为随机激光的谐振腔由散射体系组成, 其特征无法人为确定, 所以只能通过实验进行测定。这也是随机激光用于信息防伪的优势。

图 7 同样展示了不同直径毛细管中填充聚合物分散液晶体系 B 时的随机激光出射管光谱和阈值特征。

表 1 给出了在不同聚合物分散体系和不同直径的条件下, 随机激光的特性。从表中可以看出, 由于随机激光的特点, 中心波长没有呈现出一定的规律。但是从随机激光出射的阈值来看, 直径大的微管其阈值比较高, 也即 Q 值比较低。这个现象主要是由两个原因造成的, 首先直径大的微管, 在曝光制备的过程中, 由于染料对紫外光的吸收作用导致曝光的均匀性差, 因此造成不均匀的相分离过程, 导致形成的液晶微滴直径分布不够均匀, 降低了谐振腔的 Q 值。另外, 直径大的微管即使有随机激光出射, 也容易受到更多的散射中心的影响, 因此造成损耗比较大, 从而提升了激光的阈值。另外, 从中心出射峰值的半高全宽的数值也能看出, 直径大的微管的半高全宽稍微宽一些, 这也说明所形成的散射谐振腔的 Q 值小一些,

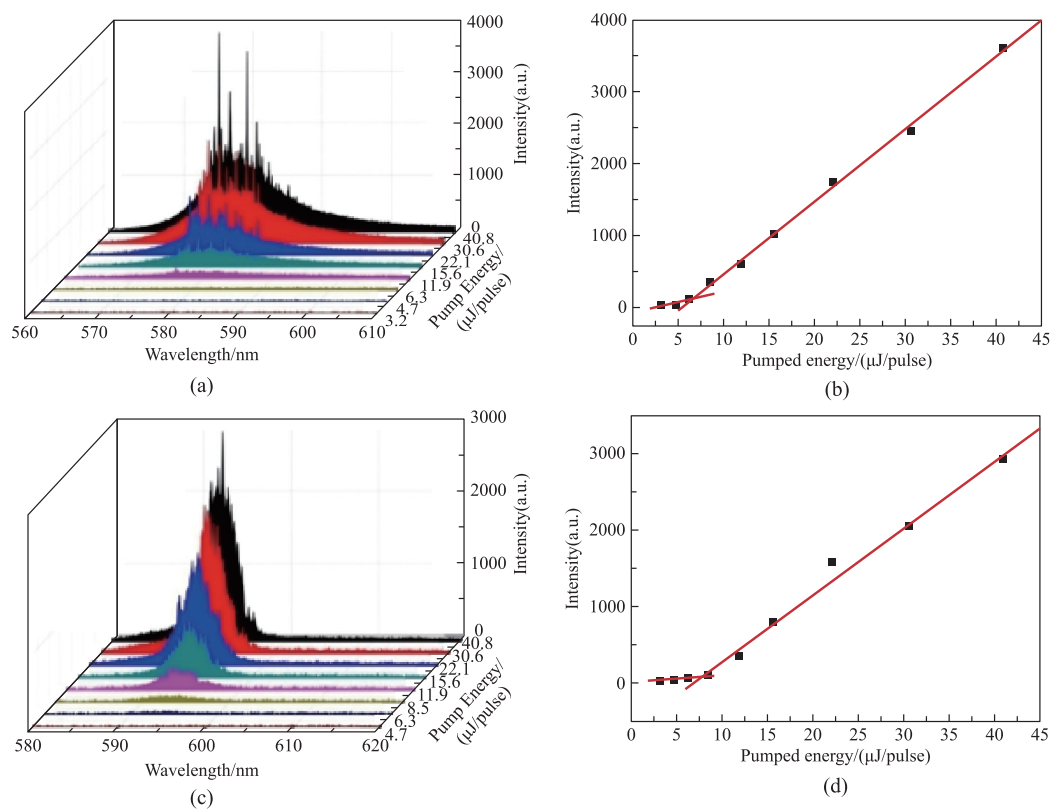


图6 毛细管中填充聚合物分散液晶体系 A 时的随机激光光谱和阈值特征

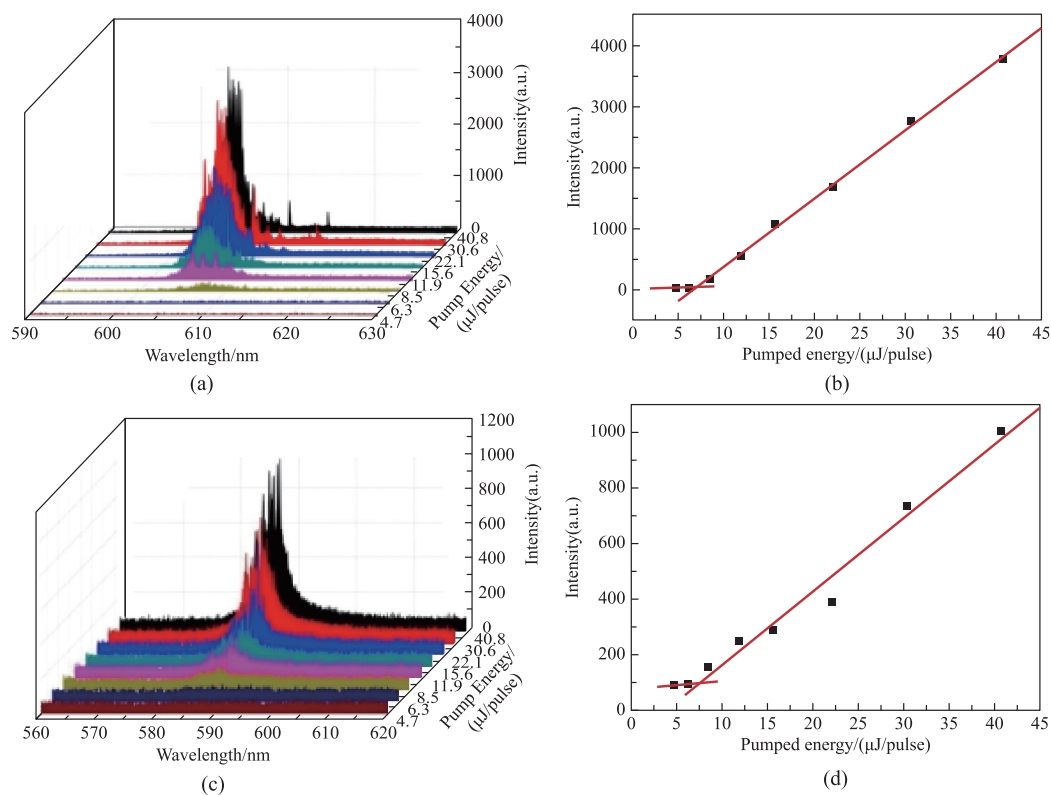
(a)~(b) 100 μm ; (c)~(d) 300 μm 

图7 毛细管中填充聚合物分散液晶体系 B 时的随机激光光谱和阈值特征

(a)~(b) 100 μm ; (c)~(d) 300 μm

主要原因还是液晶微滴直径的不均匀性造成的。

表 1 毛细管聚合物分散液晶随机激光特性

聚合物体系 微管直径	A 100 μm	A 300 μm	B 100 μm	B 300 μm
中心波长	578.1	592.7	604.3	586.4
阈值 (mJ/pulse)	6.8	7.6	6.9	7.5
半高全宽 /nm	0.14	0.17	0.13	0.18
Q 值	4129	3486	4648	3257

最后,从表中还可以对比不同的聚合物体系(A和B)的随机激光出射特性,数据表明采用NOA65的体系和采用六官能团体系的PDLCLC样品的随机激光特性几乎相同,但是B体系在小直径的微管中的表现出的Q值最高,部分说明在B体系中液晶微滴直径的分布相对比较均匀。

3 结语

本文主要研究了不同聚合物体系和不同直径微管对聚合物分散液晶体系随机激光出射特性的影响。实验结果表明,大直径微管中形成的颗粒直径不够均匀,因此随机激光的阈值比较高,中心波长的半高全宽比较大,所形成的散射微腔的Q

值比较低。本文的结论是大直径的微管不太适合作为随机激光局域限制条件。由于实验条件的限制,没有设计更细的微管进行相关的实验,但是根据本文的分析,小内径的微管将更适合于随机激光的出射。本文的结果对于随机激光器件的制备提供了一种新的几何边界限制条件,为集成光路中的随机激光器件提供了一种实现方式,未来在其中还可以开发全息聚合物液晶激光器件等。

参 考 文 献

- [1] LAWANDY N M, SLSCHANDRAN R M, LGOMES A S, et al. Laser action in strongly scattering media[J]. Nature, 1994, 368(6470): 436-438.
- [2] CAO H, ZHAO Y G, HO S T, et al. Random laser action in semiconductor powder[J]. Phys. Rev. Lett., 1999: 2278-2281.
- [3] HARADA H, NAKATSU M, NAITO H. Emission gain narrowing in dye-doped polymer dispersed liquid crystals [J]. J. Appl. Phys., 2005, 44(7L): L915.
- [4] STRANGI G, FERJANI S, BARNA V, et al. Random lasing and weak localization of light in dye-doped nematic liquid crystals[J]. Opt. Express, 2006, 14(17): 7337-7744.
- [5] FERJANI S, BARNA V, LUCA A D, et al. Random lasing in freely suspended dye-doped nematic liquid crystals[J]. Opt. Lett., 2008, 33(6): 557-559.
- [6] SUTHERLAND R L, NATARAJAN L V, TONDIGLIA V P, et al. Bragg grating in an acrylate polymer consisting of periodic polymer dispersed liquid crystal planes[J]. Chem. Mater., 1993, 5: 1533-1538.
- [7] 刘寄星,译. 北京: 高等教育出版社,2011: 115-116.
- [8] HUANG C S, LEISSA A W, MCGEE O G. Exact analytical solutions for the vibrations of sectorial plates with simply-supported radial edges[J]. Journal of Applied Mechanics, Transaction ASME, 1993, 60: 478-483.
- [9] HUANG C S, MCGEE O G, LEISSA A W. Exact analytical solutions for free vibrations of thick sectorial plates with simply supported radial edges[J]. International Journal of Solids Structures, 1994, 31: 1609-1631.
- [10] 郭敦仁. 数学物理方法[M]. 北京: 人民教育出版社,1978: 292-300, 321-324.
- [11] 梁昆森. 数学物理方法[M]. 2版. 北京: 高等教育出版社, 1978: 291-292, 364-365, 373-374.
- [12] 吴崇试. 数学物理方法[M]. 北京: 北京大学出版社,1999: 405-406, 417-418, 435-437.
- [13] 郑晓静. 圆薄板大挠度理论及应用[M]. 长春: 吉林科学技术出版社,1990: 10-12.
- [14] (上接第 108 页)
- [15] SEOK J, TIERSTEN H F. Free vibrations of annular sector cantilever plates, Part 1: Out-of-plane Motion [J]. Journal of Sound and Vibration, 2004, 271: 757-772.
- [16] SEOK J, TIERSTEN H F. Free vibrations of annular sector cantilever plates. Part 2: In plane motion[J]. Journal of Sound and Vibration, 2004, 271: 773-787.
- [17] SHI D Y, LV X H, WANG Q S, et al. A unified solution for free vibration of ortho tropic annular sector thin plates with general boundary conditions, internal radial line and circumferential Arc supports[J]. Journal of Vibroengineering, 2016, 18(1): 361-377.
- [18] 莫尔斯 P M, 英格特 K U. 理论声学上册[M]. 吕如榆, 杨训仁 译. 北京: 科学出版社, 1984: 252-257.
- [19] 钱伟长, 叶开源. 弹性力学[M]. 北京: 科学出版社, 1956: 285-286.
- [20] 王龙甫. 弹性理论[M]. 北京: 科学出版社, 1978: 357-360.
- [21] 朗道 L D, 栗弗席兹 E M. 弹性理论第五版[M]. 武际可,