

## 液晶随机激光:原理与研究进展

蔡文锋, 李焯, 唐宗元, 何慧琳, 王家伟, 罗丹, 刘言军\*

南方科技大学电子与电气工程系, 广东 深圳 518055

**摘要** 随机激光器达到阈值的方式并不是通过谐振腔,而是通过光子在增益随机散射介质中的多次散射带来的光学反馈实现的。将液晶用作散射介质,可以利用液晶易调控的特点,调整系统无序程度和染料分子的取向,使液晶随机激光器的激光阈值、强度、偏振等特性得到调控,由此可极大地拓宽随机激光器的应用范围。系统介绍了液晶随机激光器的工作原理,并分别介绍了向列相、胆甾相、蓝相和等离激元增强液晶随机激光的近期研究进展。希望能为该领域的初学者提供基础知识,同时为有经验的研究人员跟踪最新的研究进展提供重要参考。

**关键词** 激光器; 随机激光; 液晶; 多重散射; 漫散射

**中图分类号** O432.1; TN241

**文献标志码** A

**doi:** 10.3788/CJL202148.1201006

### 1 引言

激光器通常需要三个基本条件:泵浦源、谐振腔和增益介质。泵浦源激发增益介质产生粒子数反转。谐振腔使光束在增益介质中来回振荡,不断地放大,最后形成稳定的光束。当谐振腔内的增益大于损耗时,系统就达到阈值进而输出激光。其中,光学谐振腔不仅决定了光束的方向、偏振、频率等特征,还起到了选模的作用。因此,在传统激光器中,谐振腔起到了关键的作用。然而,有这样一种激光,它不依赖于谐振腔,而是利用光子在散射介质中的多次散射达到足够的增益来产生激光,这样的激光器被称为随机激光器。随机激光器无需特意设计谐振腔,其输出模式是由其散射决定的,散射程度的不同会影响出射激光的模式和相干性。

1968年,俄罗斯科学院 Letokhov<sup>[1]</sup>从理论上预言在散射介质中随机激光的存在。直到1994年,美国科学家 Lawandy 等<sup>[2]</sup>用 530 nm 的脉冲激光抽运掺有罗丹明 640 染料和 TiO<sub>2</sub> 纳米颗粒的甲醇溶液,观察到与激光类似的窄带发射峰,从而验证了 Letokhov 提出的随机散射介质中存在随机激光现象的预言。1995年, Wiersma 和 Lagendijk<sup>[3]</sup>正式

提出随机激光的概念。1999年,美国西北大学 Cao 课题组<sup>[4]</sup>通过对 ZnO 粉末进行激光泵浦,观测到几个分立的谱线宽度极窄的辐射峰,且具有明显的阈值,类似于激光辐射,该结果证明了随机激光中存在相干反馈,这极大地激发起科学家们的兴趣。

随机激光在过去的 20 年间从理论到实验都有了巨大的发展,到现在仍是光学领域前沿研究课题。然而,目前对随机激光现象的产生机理认识仍然不足,还有一些悬而未决的问题需要进一步的探究。在实验方面,科学家们尝试用各种各样的纳米材料,如半导体<sup>[5]</sup>、聚合物<sup>[6]</sup>、纳米颗粒<sup>[7-9]</sup>、纳米纤维<sup>[10]</sup>、生物结构<sup>[11]</sup>和液晶<sup>[12]</sup>等来制备随机激光器。另外,还利用金属纳米颗粒的局域表面等离激元来提高散射效率,增强随机激光的性能,以进一步降低阈值和压缩谱线宽度。随机激光器有很多独特的优点,包括成本低、制备方便、结构紧凑、无方向性、空间相干性低等,在很大程度上弥补了传统激光器在照明、成像和显示方面的不足。因此,随机激光器在无散斑成像<sup>[13-14]</sup>、医学检测<sup>[15]</sup>、温度传感<sup>[16]</sup>、超分辨光谱<sup>[17]</sup>等领域有广泛的应用。

液晶作为一种同时兼具光学各向异性和流动性的材料,在无序态时对光有强散射作用,天然地适合

收稿日期: 2021-02-18; 修回日期: 2021-03-24; 录用日期: 2021-04-12

基金项目: 国家自然科学基金(62075093)、深圳市科技计划(JCYJ20170817111349280, JCYJ20180305180635082, GJHZ20180928155207206)、南方科技大学科研启动项目(Y01236124)、南方科技大学教改项目(Y01051951)

\*E-mail: yjliu@sustech.edu.cn

作为随机激光的散射介质;同时液晶可以通过多种方式进行取向(摩擦取向、光控取向)从而使液晶分子排列具有长程有序性;另外,液晶分子的排列还可以通过施加多种外场(声、光、电、热、磁等)进行调制。因此,将增益材料掺杂在液晶材料中,利用液晶分子取向容易调控的特点,能够很好地对随机激光进行调谐,甚至可以使液晶激光器在非相干随机激光和相干随机激光之间切换。正是因为液晶随机激光的独特优点,科学家们对液晶随机激光做了大量的研究并取得了可喜的进展。本文对液晶随机激光器的工作原理和近期研究进展做了一定的归纳和总结。希望通过本文使读者对液晶随机激光领域的研究有较为全面的了解,并对该领域的研究人员有重要的参考和启发作用。

## 2 液晶随机激光原理

### 2.1 随机激光辐射原理

1968年,俄罗斯科学院 Letokhov<sup>[1]</sup>从理论上预言了在随机增益介质中随机激光的存在。他认为光子在多重散射介质中的传播是一种随机行走,类似于液体中悬浮颗粒的布朗运动。当光子在增益介质中行走时,一个光子有一定的概率引发受激辐射而产生第二个光子。微粒的散射增加了光子在介质中行走的路程,随着散射强度和泵浦强度的增大,当光子行走的路程与发生受激辐射所需的路程相同时,每个光子在离开散射介质时会产生第二个光子。增益谱在某些波长处有最大值,也就意味着此波长处的光具有竞争优势,可以被进一步放大,进而形成窄带光谱,这称为自发辐射放大。由此可以看出,在随机散射介质中的自发辐射放大类似于激光的阈值。他还提出增益与体积成正比,损耗与表面积成反比,因此存在一个临界体积,使总增益大于损耗。当达到临界体积时,光子的能量密度就会随着时间积累呈指数增加,这一点与核反应临界质量的概念相似。在一篇综述文章中,Sebbah<sup>[18]</sup>形象地将这个模型称为“光子弹”。由于 Letokhov 的计算没有考虑到强散射带来的干涉效应,因此不能很好地解释随机激光器的物理机制。

1994年,Pradhan 和 Kumar<sup>[19]</sup>研究了随机介质中激光的局域化。随后 Jiang 等<sup>[20]</sup>和 Vanneste 等<sup>[21]</sup>也对低维的光局域化进行研究。1999年,Cao 等<sup>[4]</sup>用脉冲激光泵浦 ZnO 粉末,出现了类激光的激发光谱,并用安德森局域化对其进行了解释。随机散射介质中的干涉现象一般可以用后向散射<sup>[22]</sup>和

安德森局域化进行解释。安德森局域化描述的是在导体中掺入一定的杂质,当电子在其中传输时会受到杂质的多重散射。系统的无序性强到一定程度时,多重散射波相互干涉,电子波会被局域在一个很小的区域<sup>[23]</sup>。类比电子的安德森局域化,Cao 提出了在强散射和增益的情况下,多重散射可以提供相干反馈,从而导致激光。当光子的平均自由程(连续两次碰撞之间经过的路程的平均值)等于或小于波长时,光子可能会回到之前某个散射点,从而形成一个闭环。当光子在闭环内受到的增益大于损耗时,就可能辐射激光,其中闭环起到了激光谐振腔的作用。Cao<sup>[24]</sup>还做了一系列实验使随机激光从自发辐射模式转换到局域化模式。他们将一定量的 ZnO 粉末分散在激光染料液体中,然后用 532 nm 的脉冲激光器进行泵浦,通过控制 ZnO 粉末的量可以控制散射程度。当泵浦光强度逐渐提高达到第一个阈值时,增益谱线急剧地缩窄,此时的阈值对应的是非相干反馈激光模式。当泵浦光强度继续增大达到第二个阈值时,由于此时某些损耗较小的谐振腔的增益大于损耗,增益谱线上出现一些尖峰;如果继续增大泵浦强度,可以看到更多的尖峰,此时的阈值对应的是相干反馈激光模式。Florescu 和 John<sup>[25]</sup>预测了泵浦能量超过阈值时,随机激光光子态会如传统激光一样呈现泊松分布。随机激光光子态呈现泊松分布由 Cao 等<sup>[26]</sup>在实验中测得,这进一步论证其理论的正确性。另外,Cao 等<sup>[27]</sup>还用时域有限差分(FDTD)求解在增益随机散射介质中的 Maxwell 方程组并提出了准静态模型,计算出任意时刻的辐射光谱和空间分布,对环形谐振腔理论做进一步补充。

尽管环形谐振腔理论可以较好地解释随机激光辐射的阈值和谱线结构,但人们对随机激光辐射原理的讨论并没有结束。在三维系统中出现安德森局域化需要满足 Ioffe-Regel 判据<sup>[28]</sup>,即无序化参数  $kl < 1$ 。其中,  $l$  为传输平均自由程代表介质的散射程度,  $k$  为波矢。2002年,Apalkov 等<sup>[29]</sup>指出,当介质中的  $kl$  远大于 1 时,仍然可以看到随机激光尖峰,这意味着这些激射并不依赖于 Ioffe-Regel 判据。并且由多重散射形成的谐振环的损耗很高,不太可能有如此高的增益来满足激光阈值。由此,他们提出环形波导理论,这个环形波导具有较高的介电常数,光子可以在其中以回音壁模式振荡。2004年,Wiersma 等<sup>[30]</sup>利用蒙特卡罗方法仿真光子在增益随机散射介质中的运动轨迹,从非相干辐射的角度解释了随机激光阈值特点和谱变窄现象。

他们指出,在随机散射介质中,光强会由于多重散射呈指数衰减。然而在脉冲激光泵浦下,有极少幸运的自发辐射光子由于多重散射而延长了路径,获得极大的增益,进而形成了观测到的激光尖峰,尖峰的波长便是最开始自发辐射光子的波长。2007年,叶云霞等<sup>[31]</sup>也利用蒙特卡罗方法进行仿真,得到了相似的结论。2008年,Türeci等<sup>[32]</sup>尝试结合激光半经典理论和量子理论来统一地解释随机激光器的机理。他们认为不同激光模态之间存在竞争,而这些模态之间的相互作用会影响随机激光的频率、强度和内部电磁场分布。由于随机激光的复杂性,到目前为止还没有一套公认的完备的理论可以完全解释随机激光的各种特点。

## 2.2 液晶随机激光辐射原理

常见的液晶相态可以分为向列相、近晶相、胆甾相、蓝相(BP)等。液晶分子不同的排列方式导致液晶有不同的相态,展现出不同的特性。将液晶分子看作刚性棒状分子,当入射光偏振方向平行于长轴时折射率相当于单轴晶体的 $n_e$ ,而垂直于长轴时折射率相当于单轴晶体的 $n_o$ 。两者之差( $\Delta n = n_e - n_o$ )即为液晶的光学各向异性。液晶的电控特性是指,在外界电场的作用下,液晶分子由于具有介电各向异性会沿着平行或垂直于电场线的方向偏转。类似地,液晶分子在磁场的作用下也会出现相应的偏转。当温度逐渐升高时,液晶的双折射特性会逐渐消失,直到转变为各向同性的液体,这称为液晶的热光效应。利用液晶双折射可调控的特点来制备可调谐液晶随机激光器,将使得随机激光拥有更多的应用场景。

2004年,Yamilov等<sup>[33]</sup>通过计算得出散射系统存在一个最佳的无序度可以使激光的 $Q$ 值达到最高。2006年,刘劲松团队<sup>[34]</sup>通过FDTD仿真研究了一维和二维系统中单轴散射介质的双折射程度对随机激光模式的影响。他们先固定散射介质的空间位置,随机排列散射介质的取向,然后用折射率椭球两个主轴折射率比( $\kappa = n_o/n_e$ )来控制无序程度。对于负性液晶( $n_o > n_e$ ),随着 $\kappa$ 从1逐渐增大,系统无序性越来越强,介质中的光波从漫反射态主导变为局域化主导。在实际情况下,散射介质的空间位置、大小和取向都是随机的,因此系统的散射程度应是散射介质的空间无序性和取向无序性的总和。在取向有序的状态下,液晶呈弱散射态,此时较难出现随机激光。在弱取向或未取向的状态下,液晶呈多畴态,具有较大的散射强度。当泵浦能量达到阈值时,会出现较强的随机激光行为。科学家们通常会在液

晶体系中引入聚合物来增强系统的散射程度<sup>[35]</sup>。液晶分子的取向可以通过多种方式调控,这意味着研究人员可以利用液晶来调节系统的无序性,进而提高激光的 $Q$ 值。

## 3 向列相液晶随机激光

### 3.1 向列相液晶随机激光

向列相液晶(NLC)分子呈棒状,长程无序,但长程指向有序。分子之间趋向于沿同一方向排列,具有较好的流动性,响应速度快。2006年,Strangi等<sup>[12]</sup>观察到基于染料掺杂向列相液晶(DD-NLC)的随机激光的产生,该系统可以被认为是一种无腔微型激光器。之后,Ye等<sup>[36]</sup>对DD-NLC的随机增益系统进行了研究。利用调 $Q$ 激光器Nd:YAG和光学参量振荡器(OPO)对样品进行光学泵浦,其中OPO的脉冲持续时间为5~7 ns,重复频率为10 Hz,泵浦点的直径约为20  $\mu\text{m}$ 。实验装置如图1所示。

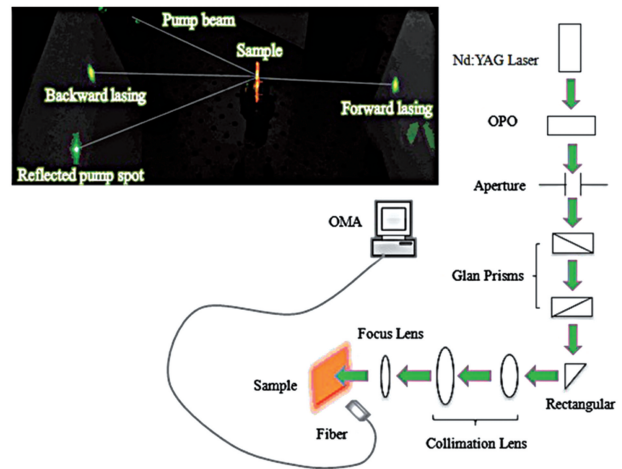


图 1 DD-NLC 随机激光泵浦与检测装置示意图<sup>[36]</sup>

Fig. 1 Experimental setup for random laser pumping and detection device of DD-NLC<sup>[36]</sup>

图 2(a)和图 2(b)展示了用光学多道分析仪(OMA)在不同泵浦能量下测得的发射光谱。图 2(c)为发射强度和半峰全宽(FWHM)与泵浦能量的关系。其中,泵浦能量阈值约为10  $\mu\text{J}/\text{pulse}$ ,超过该阈值后发射强度会急剧增加几十倍。此外,图 3 显示了更详细的发射光谱。值得注意的是,在放大自发辐射(ASE)光谱缩小之前,出现了分散的窄尖峰。

如上所述,随机激光源于多重散射。在均匀排列的液晶盒中,由于来自基板内表面的锚定力较弱,液晶排列分布相对于摩擦方向会有一定偏差,这就



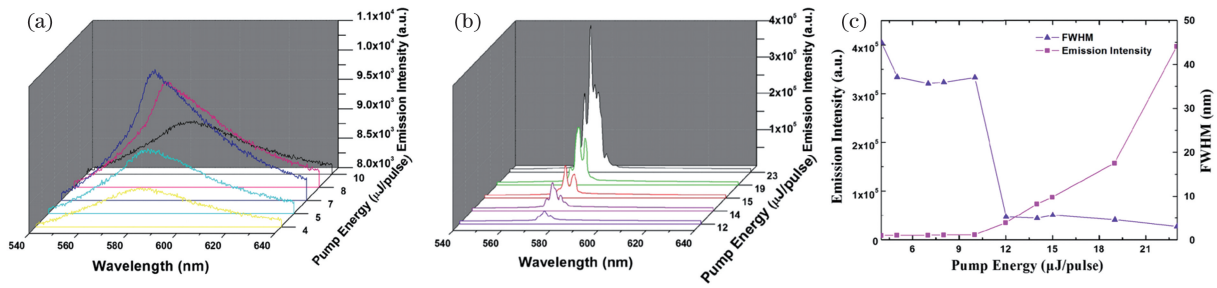


图 2 厚度为 185  $\mu\text{m}$  的液晶盒的发射光谱<sup>[36]</sup>。(a),(b)在不同泵浦能量下的发射光谱;(c)发射峰值强度和光谱 FWHM 随泵浦能量的变化

Fig. 2 Emission spectra of 185  $\mu\text{m}$ -thick cell<sup>[36]</sup>. (a), (b) Emission spectra at different pump energies; (c) emission peak intensity and FWHM of spectra as a function of pumping energies

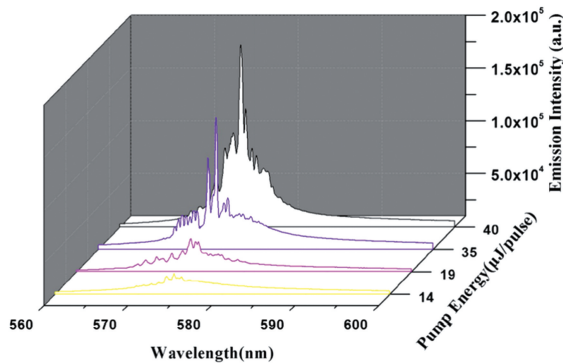


图 3 不同泵浦能量下的随机激光光谱<sup>[36]</sup>

Fig. 3 Random laser spectra under different pump energies<sup>[36]</sup>

导致了取向排列的空间非均匀性<sup>[37]</sup>。这种现象在较厚的盒中更为明显,如前面提到的厚度为 185  $\mu\text{m}$  的液晶盒。因此,盒内的散射不仅源于热波动,还源于液晶的取向排列在空间上的非均匀性。

为了研究液晶盒厚度对随机激光作用的影响,通过将 12  $\mu\text{m}$  和 185  $\mu\text{m}$  的垫片分别插入玻璃基板的两侧,制成楔形盒。混合溶液中吡咯 597(PM597) 的质量分数为 0.33%。实验以波长为 532 nm 的双频 Nd:YAG 激光器的输出光作为泵浦,入射角为 20°。结果,泵浦阈值降低到 1  $\mu\text{J}/\text{pulse}$ 。图 4 显示了发射光谱与发射峰值波长和相邻窄尖峰的平均间距对楔形样品厚度的依赖性。随着楔形样品厚度的增加,峰值波长红移约 10 nm,相邻窄尖峰的平均间距减小。进一步研究表明,当液晶盒厚度从 100  $\mu\text{m}$  变化到 300  $\mu\text{m}$  时,光致发光发射的峰值波长红移 4.5 nm。随机激光随着盒厚变化的红移可能是由发射光的重吸收引起的<sup>[38]</sup>,它可以用于可调谐的随机激光器中,不需要利用温度和电场等外部因素。

之后, Lin 等<sup>[39]</sup>研究了染料掺杂扭曲向列相液晶(DD-TNLC)在楔形盒中的偏振随机激光特性。

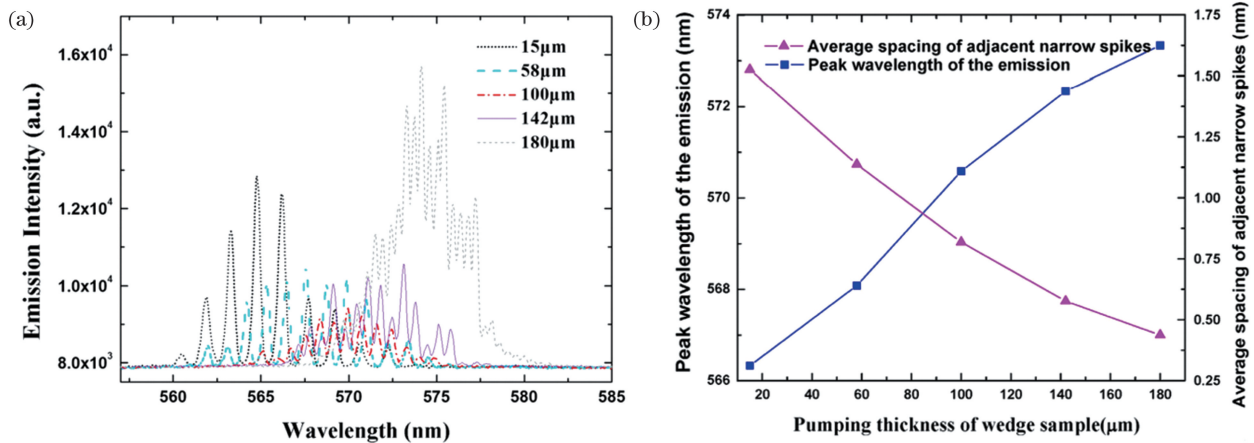


图 4 样品厚度对随机激光的影响<sup>[36]</sup>。(a)不同厚度下的发射光谱;(b)发射的峰值波长和相邻窄尖峰的平均间距对楔形样品厚度的依赖性

Fig. 4 Influences of sample thickness on random laser<sup>[36]</sup>. (a) Emission spectra with different thicknesses; (b) dependence of emission peak wavelength and average spacing of adjacent narrow spikes on thickness of wedged sample



他们提到输出偏振仅由激光染料的排列决定,而激光染料的排列会受到聚酰亚胺(PI)的摩擦方向影响。同时,由于液晶和氧化铟锡(ITO)玻璃基板的反射率差异,随机激光的输出强度可以通过调整相对于入射基板摩擦方向的泵浦偏振方向进行改变。此外,DD-TNLC 激光器的特性会受到温度影响,在 25 °C 时能产生最高的斜率效率和最低的阈值。而 Bian 等<sup>[40]</sup>指出在 DD-NLC 中,光热效应会导致液晶分子有序度的改变,进而使介电张量发生变化。因此,光热效应对 DD-NLC 的可控性起主要作用。

Dai 等<sup>[41]</sup>利用聚偏二氟乙烯(PVDF)制备柔性可拉伸的液晶随机激光器,通过调节 NLC 的有序度,便可实现激光的阈值可调。随着拉伸长度的增加,PVDF-NLC 膜的阈值会先减小后增加,呈“U”形曲线变化趋势。随着薄膜的拉伸,聚合物链的取向将诱导液晶分子的长轴沿相同的延伸方向进行取向,从而使液晶分子从完全无序变成部分有序,增大的序参数导致了阈值的减低。然而,薄膜拉伸的同

时也会使增益介质的密度降低,导致阈值升高。因此,阈值的变化趋势是由液晶分子的有序度和增益介质密度之间的竞争决定的。

2019 年,Naruta 等<sup>[42]</sup>制备了染料掺杂的铁磁向列相液晶(DD-FNLC)的随机激光器,通过弱磁场(约 1 mT)即可控制 DD-FNLC 中随机激光发射的强度。同时,如果以一束圆偏振光作为泵浦,则可以通过面内磁场控制 DD-FNLC 中随机激光的偏振。

### 3.2 聚合物分散液晶随机激光

聚合物分散液晶(PDLC)是液晶以微米或纳米级微滴形式分散在聚合物基质中形成的。光聚合诱导相分离<sup>[43-44]</sup>为常见的制备方法之一,即将 NLC 和反应性单体混合后通过光引发聚合。在未加电状态下,因液晶分子折射率与聚合物折射率不匹配,PDLC 呈现散射状态。而在加上一定强度的电场后,液晶分子发生偏转,因满足折射率匹配条件,PDLC 会变成透明状态,如图 5 所示<sup>[45]</sup>。近年来,PDLC 发展迅速,已被运用到智能窗<sup>[46]</sup>、传感器<sup>[47]</sup>、可调微透镜<sup>[48]</sup>、能量存储器件<sup>[49]</sup>等多个领域中。

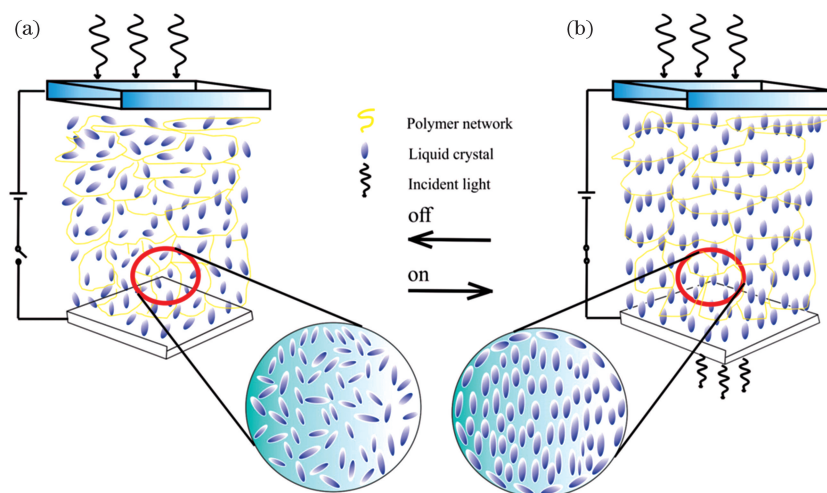


图 5 PDLC 的工作原理<sup>[45]</sup>。(a) 关态; (b) 开态

Fig. 5 Working principle of PDLC<sup>[45]</sup>. (a) Off state; (b) on state

由于 PDLC 也是一种较为理想的散射介质,将染料掺杂的 PDLC (DD-PDLC) 应用于随机激光<sup>[50-52]</sup>已经成为研究热点。2006 年,Liu 等<sup>[35]</sup>研究了 DD-PDLC 随机激光的特性,图 6 显示了在不同泵浦能量下的 DD-PDLC 的发射光谱。从图 6 可以看出,在低泵浦能量下,观察到一个宽带发射谱,线宽约为 40 nm。当入射泵浦能量超过 25  $\mu\text{J}$  时,发射光谱中会出现离散峰。这些峰的线宽约为 1 nm,比阈值以下的 ASE 线宽的 1/40 还小。当泵浦强度进一步增加时,会出现更多尖锐的峰。这些离散的峰是由于反复的光散射造成的。如图 6 的插图 II 所示,

光可能会返回到之前经过的散射体,从而形成一个光闭环路径。当沿光闭环路径的放大倍数超过损耗时,在充当谐振腔的环路中便可以发生激光作用。

图 7 显示了发射光谱随泵浦能量的关系。从图 7 可以看出,随机激光的阈值约为 25  $\mu\text{J}/\text{pulse}$ 。在低于阈值的低泵浦能量时,随着泵浦能量的增加,ASE 发射谱带明显变窄,即增益变窄。高于阈值时,在 ASE 谱的包络线上出现了由若干尖峰组成的细微结构,并随着泵浦能量的增加而突然增大。这些尖峰的光谱宽度小于 1 nm。在泵浦能量约为 55  $\mu\text{J}/\text{pulse}$  时,ASE 发射光谱的 FWHM 约为

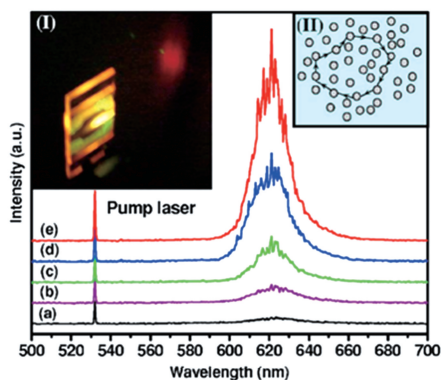


图 6 DD-PDLC 样品在不同泵浦能量下的发射光谱<sup>[35]</sup>。(a) 泵浦能量为 20  $\mu\text{J}/\text{pulse}$ ; (b) 泵浦能量为 25  $\mu\text{J}/\text{pulse}$ ; (c) 泵浦能量为 28  $\mu\text{J}/\text{pulse}$ ; (d) 泵浦能量为 35  $\mu\text{J}/\text{pulse}$ ; (e) 泵浦能量为 47  $\mu\text{J}/\text{pulse}$ 。插图 I 和 II 分别是在 40  $\mu\text{J}/\text{pulse}$  下激发的 DD-PDLC 样品的发射照片和在 DD-PDLC 样品中通过多重散射形成光闭环路径的示意图

Fig. 6 Emission spectra of DD-PDLC sample with different pump energies<sup>[35]</sup>. (a) Pump energy is 20  $\mu\text{J}/\text{pulse}$ ; (b) pump energy is 25  $\mu\text{J}/\text{pulse}$ ; (c) pump energy is 28  $\mu\text{J}/\text{pulse}$ ; (d) pump energy is 35  $\mu\text{J}/\text{pulse}$ ; (e) pump energy is 47  $\mu\text{J}/\text{pulse}$ . Insets I and II are emission photo of DD-PDLC sample excited at 40  $\mu\text{J}/\text{pulse}$  and a schematic diagram of a closed loop path of light formed by multiple scattering in a DD-PDLC sample, respectively

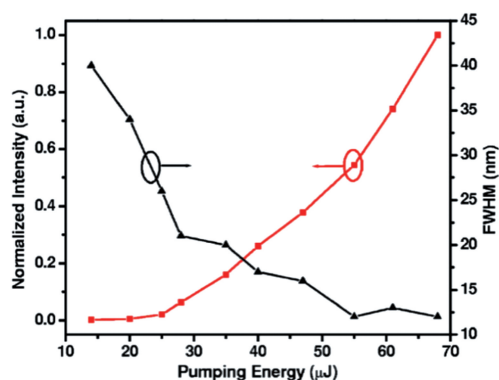


图 7 DD-PDLC 样品 ASE 光谱的输出强度和 FWHM 作为激光泵浦能量的函数<sup>[35]</sup>

Fig. 7 Output intensity and FWHM of ASE spectra from DD-PDLC sample as functions of laser pump energy<sup>[35]</sup>

13 nm, 随着泵浦能量的增加几乎保持恒定。

2019 年, Dai 等<sup>[53]</sup> 通过掺杂磁性纳米粒子 (MNP), 实现了 DD-PDLC 随机激光的磁调谐。随着 MNP 的浓度增加, 随机激光的包络中心呈现蓝移。此外, 光谱偏移和发射强度与外部磁场的方向

有关。与垂直磁场相比, 平行磁场会引起随机激光光谱的包络中心产生更大的蓝移。同时, 平行方向磁场的发射强度比垂直方向磁场的发射强度更强。而 Lee 等<sup>[6]</sup> 在之前则提出了一种光控 DD-PDLC 随机激光的方法。通过掺杂偶氮染料 D2, 当照射连续绿色光束时, D2 染料会出现反式  $\rightarrow$  顺式异构化, 导致液晶微滴发生  $N \rightarrow I$  相变; 而照射连续红色光束时, D2 染料会出现顺式  $\rightarrow$  反式异构化, 导致液晶微滴发生  $I \rightarrow N$  相变。因此, 绿光照射能使液晶微滴与聚合物的折射率之差减小, 从而增大扩散常数 (或传输平均自由路径), 减小散射强度, 进而减小随机激光强度; 而红光照射则会产生相反的效果。进一步地, Wang 等<sup>[54]</sup> 制备了偶氮染料掺杂的 PDLC 微管随机激光器, 并得到了相似的结论。

#### 4 胆甾相液晶随机激光

胆甾相液晶 (CLC) 大多数为胆甾醇的衍生物, 通常也可以通过在 NLC 中添加手性掺杂剂来制备, 因此也被称为手性 NLC<sup>[55-57]</sup>。CLC 中的分子在层内呈向列相排列, 即沿一定方向自组装平行排列; 其具有很多特殊的光学特性, 如布拉格反射、旋光性及圆二色性等。与一般的光子晶体不同的是, CLC 的选择性反射与入射光的偏振态有关, 通常只对圆偏振光具有选择性反射, 即当入射光的波长位于光子带隙内, CLC 会选择性反射与自身结构旋光性相同的光, 而透射出与自身结构旋光方向相反的光<sup>[58-59]</sup>。CLC 的选择性反射带宽遵循布拉格发射定律  $\lambda = nP$ , 其中  $n$  为 CLC 的平均折射率,  $P$  为 CLC 的螺距。如图 8 所示的 CLC 分子排列结构图中, 螺距是表征胆甾相螺旋结构的重要参数之一, 它是分子指向矢沿垂直于螺旋轴方向旋转  $2\pi$  经过的

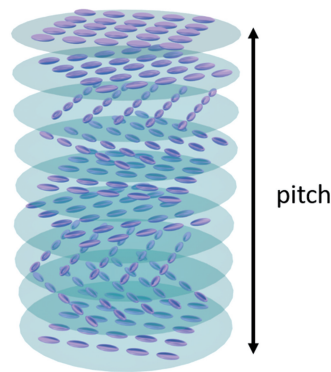


图 8 CLC 分子排列结构示意图

Fig. 8 Schematic diagram of CLC molecular arrangement structure

层间距。CLC 的螺距对于外界环境因素的刺激极为敏感,因此利用不同的外场条件如温度、电场、光场、氢离子浓度指数(pH 值)等对反射带隙进行可控调谐的研究已经广泛开展<sup>[60-63]</sup>。

近年来,激光染料掺杂的 CLC(DD-CLC)引起了研究学者广泛关注,并被用于调制带边激光和随机激光。在平面态中,CLC 呈现螺旋状的周期性光子晶体结构,由于光子态密度在禁带边缘发散,光子群速度趋近于零,增益因子在带隙边缘显著增强,通常将激光染料的发射峰位调节至带隙边缘,可以产生单模的带边激光发射<sup>[64-66]</sup>。除了带边激光发射之外,DD-CLC 随机激光也得到了广泛研究,主要集中于对随机激光产生与调谐的物理机制的研究<sup>[38,67-72]</sup>,进而实现了激光阈值低、激光效率高、可调谐范围宽的随机激光。

在 CLC 中,激光的反馈不是由外部谐振腔提供的,而是由随机分布在有源介质中的散射体决定的。散射介质可以产生强烈的光散射的特性,对随机激光的产生至关重要,因而利用 CLC 的强散射特性来实现无腔的随机激光引起了广泛关注。2008 年,He 等<sup>[38]</sup>利用 CLC 的多次散射反馈机制以及光聚合物来

固定胆甾相液晶的散射结构的方式,在 DD-CLC 聚合物溶液和薄膜中均实现了随机激光的出射。

通常,随机激光所需的无序结构诱导的散射对带边激光发射会产生不良影响,因此在 CLC 中随机激光和带边激光两者一般不互存,但研究人员发现在电场作用下,可以实现对 CLC 中两种激光出射模式的调控。2012 年,Morris 等<sup>[67]</sup>利用外加电场频率的改变,实现了随机激光与带边激光的选择性出射。在实验中,由 NLC MLC-7029、手性剂 BDH1281 以及激光染料 PM597 组成的混合物被注入双面平行取向的液晶盒中,形成平面的 CLC 结构。如图 9 所示,当外加电场频率为 10 Hz 时,由于电流体动力不稳定性(EHDI),CLC 呈现焦锥态,产生多次光散射,从而导致随机激光的产生,如图 9(a)所示;当电场频率提高到 560 Hz 时,多次散射引起的随机激光多个尖峰之间靠得很近,形成了一个平滑的包络,如图 9(b)所示;而当电场频率为 5 kHz 时,由于介电耦合效应,CLC 呈现平面螺旋态排列,因而促使带边激光的出射,如图 9(c)所示。利用电场频率调谐激光模式和线宽为实现微米级激光器的应用开辟了新的调谐途径。

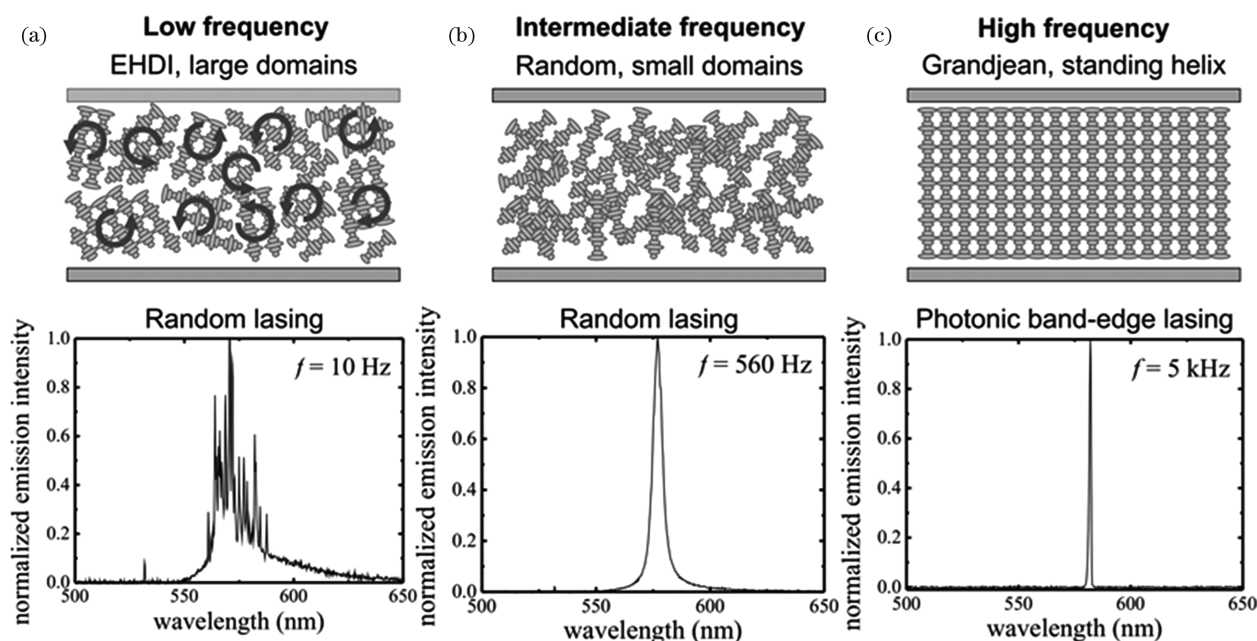


图 9 施加不同电场下,DD-CLC 样品在 532 nm 光学激发时的归一化发射光谱<sup>[67]</sup>。(a) 13 V/ $\mu\text{m}$ , 10 Hz; (b) 13 V/ $\mu\text{m}$ , 560 Hz; (c) 13 V/ $\mu\text{m}$ , 5 kHz

Fig. 9 Normalized emission spectra from DD-CLC sample when optically excited at  $\lambda=532$  nm for different applied electric fields<sup>[67]</sup>. (a) 13 V/ $\mu\text{m}$ , 10 Hz; (b) 13 V/ $\mu\text{m}$ , 560 Hz; and (c) 13 V/ $\mu\text{m}$ , 5 kHz

此外,Huang 等<sup>[68]</sup>提出了一种基于电场诱导 CLC 指纹结构重构的方法实现了激光波长和多种模式的灵活调制。当电压加至 2 V 时,CLC 的纹构

由平面态变成带缺陷的直条纹状,此时激光输出模式为多模,如图 10(a)、图 10(d)和图 10(g)所示;当施加 2V 电压静置 3 分钟后,指纹呈现无缺陷的直



条纹状,这有利于单模激光的输出,如图 10(b)、图 10(e)和图 10(h)所示。其中激光产生的机理主要是指指纹条纹中周期性折射率调制产生的高阶分布反馈和液晶结构中的波导效应。而当电压增至

10 V 再切换至 2 V 时,如图 10(c)、图 10(f)和图 10(i)所示,样品完全呈现无序的条纹结构,由于缺陷引起的周期性波动以及光在螺旋系统中的散射,导致了随机模式激光产生。

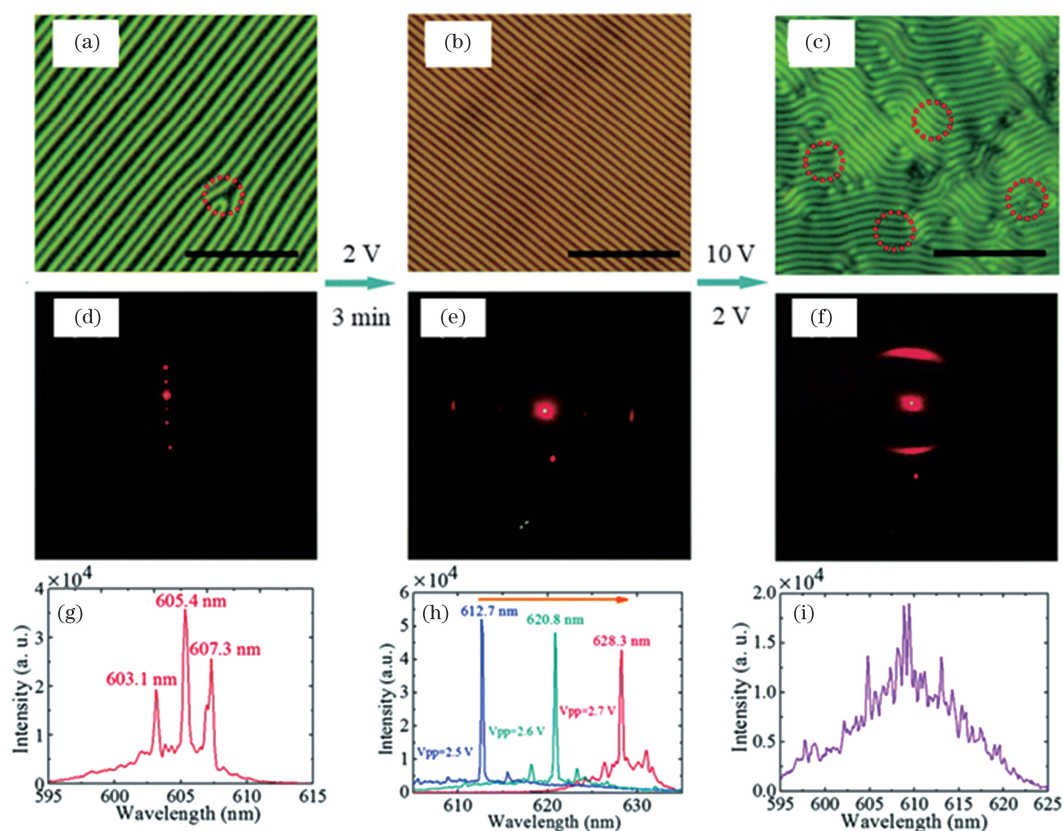


图 10 不同电压驱动下的重构 CLC 的光学结构、对应的衍射图案以及激光发射光谱<sup>[68]</sup>。(a),(d),(g)施加 2 V 电压;  
(b),(e),(h) 施加 2 V 电压后 3 分钟;(c),(f),(i)施加 10 V 电压后再突然下降到 2 V

Fig. 10 Optical textures, corresponding diffraction patterns and laser emission spectra of reconstructed CLC under different driven voltages<sup>[68]</sup>. (a),(d),(g) Applied voltage of 2 V; (b),(e),(h) 3 minutes after applying voltage of 2 V; (c),(f),(i) applied voltage of 10 V followed by a sudden drop to 2 V

此外,基于带隙调控的随机激光也被广泛研究。2018 年,Hu 等<sup>[69]</sup>设计了一种单面取向的缺陷态液晶盒,利用液晶多重散射以及近红外光热控的带隙调谐,实现了可调范围为 80 nm 的随机激光。该小组在 2021 年还构建了一种聚合物稳定的 CLC<sup>[70]</sup>,通过电场调控,在光子带边实现了具有相干性较低以及调谐范围较宽(100 nm)特性的随机激光出射。此外,Ye 等<sup>[71]</sup>设计了一种正交取向的液晶盒,通过改变 CLC 中手性掺杂剂浓度和温度两种方法调控染料荧光发射谱与光子禁带的相对位置,从而实现了光子带边激光和随机激光的切换。2020 年,Gao 等<sup>[72]</sup>在未取向的液晶盒中得到强散射态的 CLC,通过调控带隙位置,可以同时观察到随机激光和带边激光的出射。而当 CLC 的反射带与染料的荧光峰重叠,且带边与激发波长同时重合时,可实现随机激

光阈值的急剧降低。

## 5 蓝相液晶随机激光

蓝相液晶(BPLC)<sup>[73-74]</sup>是一种手性中间相,存在于各向同性相和胆甾相之间。根据结构的不同,BP 至多分为三种:BPI、BPII 和 BPIII,分别是体心立方结构、简单立方结构和无规则排列的雾状相。为了扩大 BPLC 的工作温度范围,科学家们将小分子单体加入 BPLC 材料,通过光聚合、热聚合等方式制备聚合物稳定 BPLC(PS-BPLC)<sup>[75]</sup>。BPLC 具有三维光子晶体结构、光学各向同性(偏振无关性)<sup>[76]</sup>、比 NLC 更快的电光响应<sup>[77]</sup>以及制备简单等诸多优异的特性。因此与 NLC 和 CLC 相比,BPLC 更适合作随机激光的主体材料。其机理是从增益介质中发出的辐射光在 BPLC 碎片间形成多重

散射, 散射光经过固定的运动轨迹形成闭合光路实现相干反馈。经过多次循环, 增益大于损耗时产生随机激光, 其中光散射是由 BPLC 中碎片的不连续晶界或者 PS-BPLC 中聚合物与液晶分子的折射率不匹配造成<sup>[78-79]</sup>。

2012 年, Chen 等<sup>[79]</sup>研究了 BPLC 和 PS-BPLC 中的基于相干反馈的随机激光。BPLC 随机激光的特性能够通过 BPLC 碎片尺寸而改变。将 BPLC 加热至各向同性相, 以不同的速率冷却分别可以得到小(小于  $3\ \mu\text{m}$ )、中( $10\sim 20\ \mu\text{m}$ )、大(大于  $30\ \mu\text{m}$ )三种尺寸的碎片, 如图 11(a)~图 11(c)所示。如图 11 所示, 随着脉冲激发, 小尺寸 BPLC 随机生成了离散的激光模式; 中尺寸 BPLC 在大多数脉冲下都产生了 612、614、617、620 nm 激光模式; 大尺寸 BPLC 则几乎在每个脉冲下都有 609、611、613、617 nm 激光模式; 可以看出碎片尺寸越大, 产生的激光模

式越稳定, 同时间接证明了激光尖峰不是由毛细管壁的回音壁效应引起的。以上现象可以基于闭合光路的数目和 BPLC 碎片稳定性解释。首先, 不同的脉冲泵浦激发出的光散射路径不同, 产生的激光模式不同; 碎片尺寸越大, 可形成的闭合光路越少, 能够实现相干反馈的路径有限, 进而激光模式更稳定。其次, 强烈的泵浦光照射对 BPLC 碎片产生了光学扰动和热扰动<sup>[80]</sup>。尺寸越小, 碎片中的完整晶格越少, 结构稳定性越弱, 容易受到干扰; 尺寸越大, 则结构稳定性强, 不易被改变结构进而影响散射路径, 因此激发的激光模式更稳定。如图 11(d)所示,  $6\sim 15\ \mu\text{m}$  碎片的 PS-BPLC 样品产生了稳定的 612、617、621 nm 三种激光模式。对 PS-BPLC 随机激光进一步研究发现, 阈值与温度和散射强度相关, 散射强度与折射率不匹配、结构形状相关。

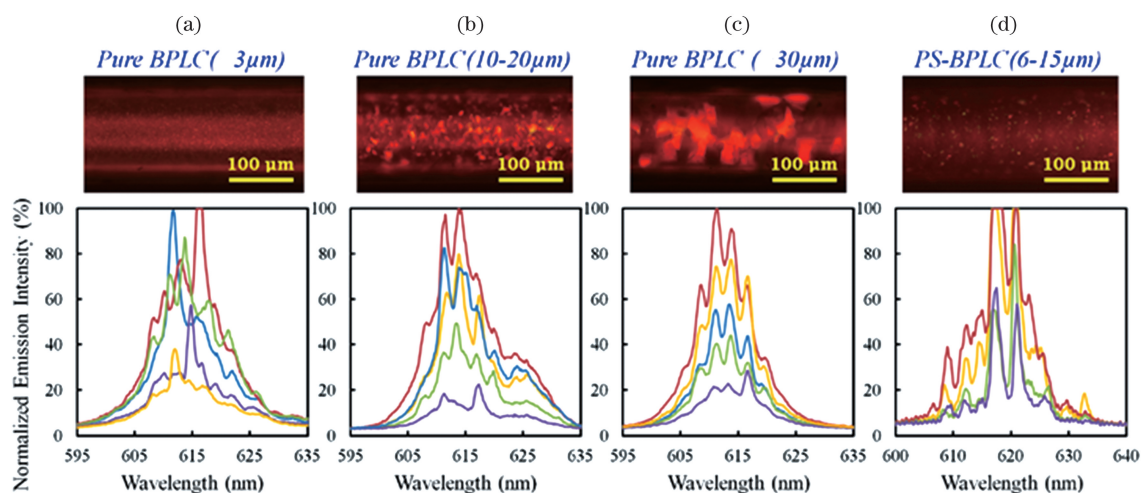


图 11 反射式偏光显微镜图像和发射光谱<sup>[79]</sup>。(a)小尺寸纯 BPLC 碎片(小于  $3\ \mu\text{m}$ );(b)中尺寸纯 BPLC 碎片( $10\sim 20\ \mu\text{m}$ );(c)大尺寸纯 BPLC 碎片(大于  $30\ \mu\text{m}$ );(d)中尺寸 PS-BPLC 碎片( $6\sim 15\ \mu\text{m}$ )

Fig. 11 Images of polarized optical microscope in reflected light mode and emission spectra<sup>[79]</sup>. (a) Small size pure BPLC platelet (less than  $3\ \mu\text{m}$ ); (b) intermediate size pure BPLC platelet ( $10\sim 20\ \mu\text{m}$ ); (c) large size pure BPLC platelet (more than  $30\ \mu\text{m}$ ); (d) intermediate size PS-BPLC platelet ( $6\sim 15\ \mu\text{m}$ )

2020 年, Liao 等<sup>[81]</sup>提出将 PS-BPLC 放置在楔形盒中, 对随机激光进行空间调谐和电场调谐。空间调谐是通过在  $x=0\ \text{mm}$  到  $x=8\ \text{mm}$  范围内改变泵浦位置, 激光辐射波长从  $628\ \text{nm}$  蓝移到  $606\ \text{nm}$ , 且随着盒厚减小, 阈值增加, 如图 12 所示。这是由于楔形盒存在厚度梯度, 导致薄区域液晶材料被压缩, 散射颗粒之间的空间减少, 发射光在薄区域的停留时间比厚区域短, 导致平均散射自由程降低。不同区域的 PS-BPLC 微滴选择性反射入射光, 因此随着楔形盒厚度减小, 反射光从红色逐渐变成蓝色。电场强度增加, 激光辐射峰值波长产生红移,

辐射强度显著减小; 电压达到  $150\ \text{V}$ , 峰值的红移达到饱和, 如图 13 所示。这是因为电场增加时, 液晶分子将重新定向并跟随电场方向, 导致多重散射减少, 辐射强度下降; 同时高电场导致克尔效应, 平均散射自由程增加, 导致辐射的激光波长红移。

2020 年, Chauhan 等<sup>[82]</sup>提出将掺杂激光染料的 BPLC(DD-BPLC)封装在聚合物构成的球形外壳中形成液滴。相比将 DD-BPLC 简单放置在盒内, 液滴形态扩展了 BPLC 的温度范围, 同时具有更高的 Q 值, 阈值从  $7.8\ \mu\text{J}/\text{pulse}$  降至  $3.7\ \mu\text{J}/\text{pulse}$ , 如图 14(a)所示。阈值低是因为将 BPLC 放置在微滴内, 微滴表面

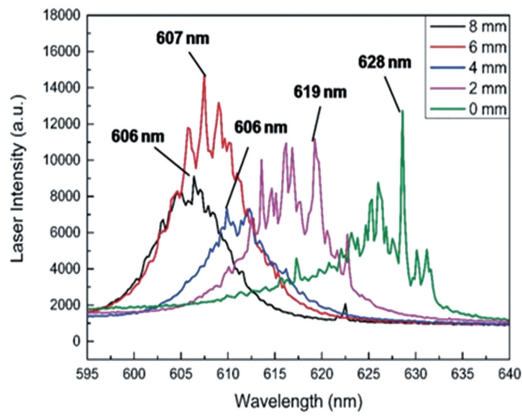


图 12 在  $x=0, 2, 4, 6, 8$  mm 不同位置处 PS-BPLC 楔形盒产生的激光光谱<sup>[81]</sup>  
 Fig. 12 Laser spectra of PS-BPLC-wedged cell generated from positions of  $x=0, 2, 4, 6, 8$  mm<sup>[81]</sup>

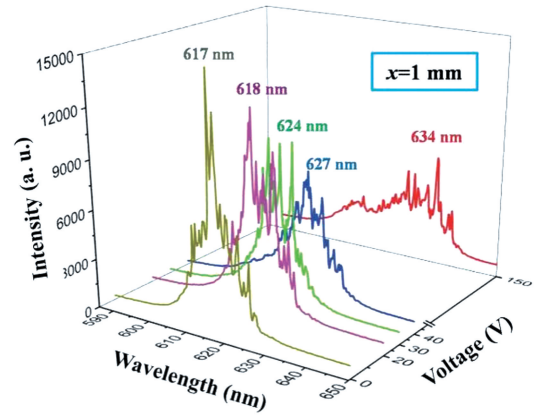


图 13  $x=1$  mm 位置处不同驱动电压下 PS-BPLC 楔形盒的激光光谱<sup>[81]</sup>  
 Fig. 13 Laser spectra of PS-BPLC-wedged cell at position of  $x=1$  mm under different driven voltages<sup>[81]</sup>

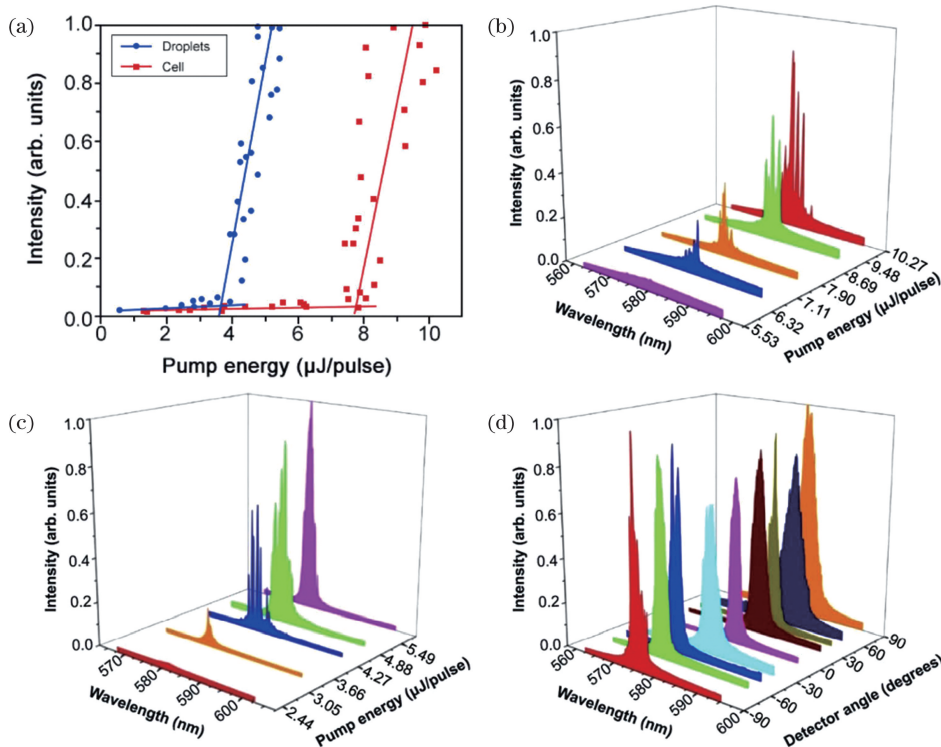


图 14 激光发射强度与泵浦能量的关系图<sup>[82]</sup>。(a)  $100 \mu\text{m}$  液滴中和  $100 \mu\text{m}$  盒中的掺杂 PM597 的 BPI 的激光阈值比较；(b)  $100 \mu\text{m}$  盒中掺杂 PM597 的 BPI 的发射光谱；(c) 直径为  $100 \mu\text{m}$  的聚氨酯封装 BPI 液滴的发射光谱；(d) 在光泵平面上收集的发射光谱证实了 BP 液滴的全向性  
 Fig. 14 Plots of laser emission intensity as a function of pump energy<sup>[82]</sup>. (a) Laser threshold comparison between PM597-doped BPI in  $100 \mu\text{m}$  droplet and PM597-doped BPI in  $100 \mu\text{m}$  cell; (b) emission spectra of PM597-doped BPI in  $100 \mu\text{m}$  cell; (c) emission spectra of polyurethane encapsulated BPI droplets of  $100 \mu\text{m}$  in diameter; (d) emission spectra collected across plane of optical pump confirm omnidirectionality of BP droplet

呈球形,利用透镜效应聚焦,提高了内部光子密度,因此辐射效率高。图 14(b)和图 14(c)分别是盒内和液滴内 BPLC 的随机激光发射光谱,其中均选择 6 个激光模式进行表征。图 14(d)表示 BPLC 液滴

的随机激光发射具有全向性,跨光泵平面的  $-90^\circ$  至  $+90^\circ$  都能够检测到强度近似相等的激光。封装在聚合物微壳中使 BPLC 微滴能够被放置在任意形状的位置和表面,进行多层堆叠或大尺度周期性堆叠。



除了研究不同封装形态对随机激光的影响, Wang 等<sup>[83]</sup>研究了 PS-BPLC 双色相干随机激光, 介绍了泵浦光能量和偏振对随机激光的影响。双色激光辐射是由于两种荧光聚集体的存在, 单体和二聚体引起的<sup>[84]</sup>。染料单体是由 532 nm 泵浦光直接激发, 产生短波长随机激光; 二聚体是由激发态单体到基态二聚体的能量传递过程中的辐射和非辐射能量激发, 产生长波长随机激光。另外, 泵浦光的偏振可以控制两组双色随机激光峰之间的相对强度。当泵浦光的偏振度旋转 90° 时, 短波长组发射峰的强度减小, 长波长组发射峰的强度增大。此外, 他们还发现当偏振角从 0° 增加到 48° 时, 长波长组的激光峰波长红移了约 15 nm。

## 6 等离子体增强液晶随机激光

起初, 随机激光的研究主要集中在利用半导体介质颗粒作为散射介质来提供增益<sup>[5]</sup>。随着后续研究的深入, 贵金属纳米材料逐渐被引入到随机激光系统中<sup>[7-9, 85-86]</sup>。当光波入射到贵金属纳米颗粒上时, 由于颗粒的尺寸远小于入射光波长, 贵金属内部的自由电子趋于以一致的方式进行集体振荡。当入射光的频率与贵金属纳米颗粒的本征频率接近或相同时, 贵金属纳米颗粒会发生强烈的共振, 即所谓的局域表面等离子体共振 (LSPR), 从而在贵金属纳米颗粒表面产生极大的局域电场增强。与介电材料相比, 金属纳米粒子散射截面更大, 更容易形成多重光散射。将金属纳米粒子与活性介质结合到无序材料中, 发射谱会展示出与光子散射自由路径相关的随机激光尖峰。此外, 它还可以通过 LSPR 提高激光增益, 吸收入射光并将能量传递给增益介质, 降低随机激光阈值。贵金属纳米粒子的等离子体共振波长和局域电场强度与粒子的形状、尺寸等密切相关, 研究人员利用纳米圈、纳米线、纳米星和纳米花等不同形态纳米粒子, 使得随机激光中光散射的强度得到了进一步提高<sup>[7-9, 86]</sup>。然而, 金属纳米颗粒的尺寸相比于液晶分子较大, 研究人员发现纳米粒子一般在液晶体系中分散性较差, 容易团聚<sup>[87-89]</sup>。这主要是由于金属纳米粒子对液晶的扰动较大, 液晶分子之间的弹性作用及其缺陷态都会导致金属纳米颗粒团聚。目前, 研究人员利用聚合物在金属纳米粒子表面进行钝化处理, 使其与液晶形成类向列相排列的均匀分散体<sup>[87]</sup>。此外, 在金属

纳米颗粒进行表面功能化修饰, 也能有效地将纳米颗粒良好地分散在液晶中<sup>[90-92]</sup>。尽管人们对等离子体随机激光已经有很多研究, 但将贵金属纳米粒子引入到液晶体系中, 利用贵金属纳米粒子的等离子体共振特性和液晶的可调控特性实现可控等离子体增强的液晶随机激光的研究还很少。

Deng 研究小组<sup>[93-97]</sup>在等离子体增强液晶随机激光方面做了较多的研究。2016 年, 该小组<sup>[93]</sup>提出加入金纳米粒子的染料 (DCM) 平行取向的 NLC 器件 (NPDDNLC), 研究了电控等离子体增强相干随机激光, 并研究了金纳米颗粒和 NLC 在随机激光形成中的作用。研究发现在不含金纳米粒子的液晶中无法观察到随机激光, 但是加入金纳米粒子后, 就可以观察到低阈值的随机激光。通过分析 NPDDNLC 和染料掺杂的金纳米颗粒乙醇溶液的发射光谱和激发阈值, 如图 15(a) 和图 15(b) 所示, 发现相较于增强介质的散射强度, LSPR 增强金纳米颗粒附近的局部电场对提高激光效率更有效。此外, NLC 对光的多次散射在低阈值随机激光的形成中也很重要。图 15(c) 和图 15(d) 显示了液晶盒的厚度会影响随机激光的特性。另外, 通过对液晶盒施加电压, 可以控制随机激光的发射强度, 如图 15(e) 和 15(f) 所示, 这种控制主要是通过改变液晶分子和染料分子的排列方向, 进而改变染料的吸收和发射强度来实现的。

2020 年, Lin 等<sup>[85]</sup>在 DD-CLC 中引入了银纳米棱柱 (AgNPs), 随机激光器件结构示意图和测量装置分别如图 16(a) 和图 16(b) 所示。他们研究了从 DD-CLC 随机激光的带边激光发射, 并在其中一块玻璃板上滴加了 AgNPs。与仅具有约 575 nm 的短边激光峰的纯 DD-CLC 样品相比, 借助 LSPR 的样品激发了约 650 nm 处的长边缘激光峰。

此外, 该小组还研究了不同尺寸的 AgNPs 对 DD-CLC 随机激光斜率效率和激光阈值的影响, 可以分为 S-0、S-I、S-II、S-III 和 S-IV。发现当 DD-CLC 随机激光发射峰与所用 AgNPs 的吸收峰匹配时, DD-CLC 随机激光获得了最高的斜率效率和最低的阈值, 如图 17(a) 所示。通过热控制, 图 17(b) 和图 17(c) 展示了对 DD-CLC 激光器的长边和短边激光发射峰的有效调控, 在 5°C 时具有最长的发射峰 (约 673 nm)。通过经济物理学函数  $\alpha$ -稳定分布分析, DD-CLC 随机激光显示出较严重的重尾分布, 且  $\alpha < 2$  时, 随机激光表现出 Lévy 行为。

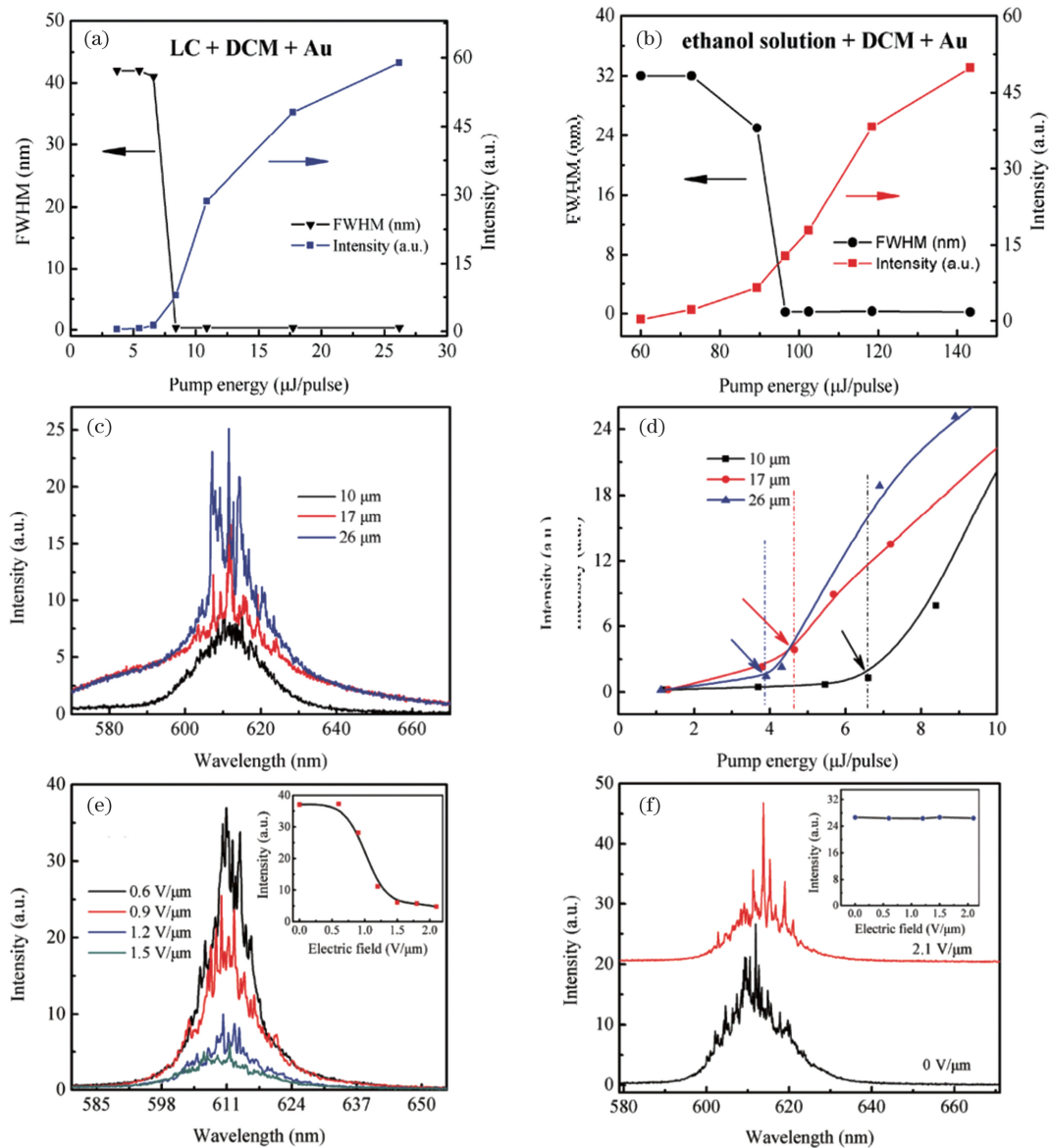


图 15 NPDDNLC 样品在不同条件下的发射光谱<sup>[93]</sup>。(a) NPDDNLC 样品中泵浦能量与 FWHM 和输出强度的关系；(b) 染料及金纳米颗粒共掺的乙醇溶液样品中泵浦能量与 FWHM 和输出强度的关系；(c) 具有 10、17、26  $\mu\text{m}$  盒厚的 NPDDNLC 样品在固定泵浦能量 8.39  $\mu\text{J}/\text{pulse}$  下的发射光谱；(d) 具有 10、17、26  $\mu\text{m}$  盒厚的 NPDDNLC 样品中输出强度与泵浦能量的关系；(e) 泵浦光的偏振平行于摩擦方向时，具有 10  $\mu\text{m}$  盒厚的 NPDDNLC 样品在固定泵浦能量 17.87  $\mu\text{J}/\text{pulse}$  下不同施加电场的发射光谱；(f) 泵浦光的偏振垂直于摩擦方向于摩擦方向时，具有 10  $\mu\text{m}$  盒厚的 NPDDNLC 样品在固定泵浦能量 17.87  $\mu\text{J}/\text{pulse}$  下不同施加电场的发射光谱。(e) 和 (f) 中的插图展示了电场从 0  $\text{V}/\mu\text{m}$  增加到 2.1  $\text{V}/\mu\text{m}$  时输出强度的变化

Fig. 15 Emission spectra of NPDDNLC sample under different conditions<sup>[93]</sup>. (a) Peak intensity and FWHM as functions of pump energy in NPDDNLC sample; (b) peak intensity and FWHM as functions of pump energy in indye-and-Au-nanoparticle-co-doped ethanol samples; (c) emission spectra of NPDDNLC samples with the cell thickness of 10, 17, 26  $\mu\text{m}$  at fixed pump energy of 8.39  $\mu\text{J}/\text{pulse}$ ; (d) output intensity as a function of pump energy in NPDDNLC sample with the cell thickness of 10, 17, 26  $\mu\text{m}$ ; (e) spectra of NPDDNLC sample with the cell thickness of 10  $\mu\text{m}$  at fixed pump energy of 17.87  $\mu\text{J}/\text{pulse}$  under different applied electric fields when polarization of the pump light is parallel to rubbing direction; (f) spectra of NPDDNLC sample with the cell thickness of 10  $\mu\text{m}$  at fixed pump energy of 17.87  $\mu\text{J}/\text{pulse}$  under different applied electric fields when polarization of the pump light is perpendicular to rubbing direction. Insets show the output intensity as a function of the applied electric field from 0  $\text{V}/\mu\text{m}$  to 2.1  $\text{V}/\mu\text{m}$  in (e) and (f)

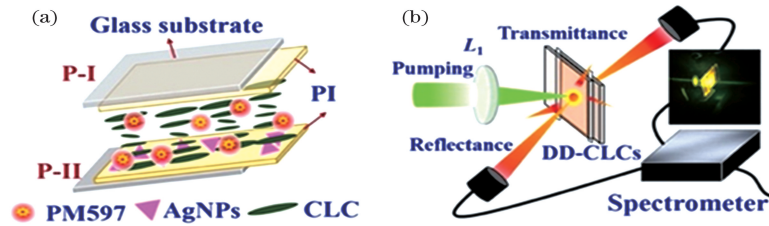


图 16 DD-CLC 随机激光器件结构及实验示意图<sup>[85]</sup>。(a)DD-CLC 随机激光结构示意图,其中在液晶盒中的 P-II 玻璃基板上引入 AgNPs;(b)DD-CLC 随机激光的产生和测量装置,内插的图片为产生的 DD-CLC 随机激光

Fig. 16 Schematic diagram of DD-CLC random laser structure and experimental setup<sup>[85]</sup>. (a) Schematic diagram of DD-CLC random laser structure, in which AgNPs is introduced on P-II glass substrate in liquid crystal cell; (b) generation and measurement devices of DD-CLC random laser, inset shows generated DD-CLC laser

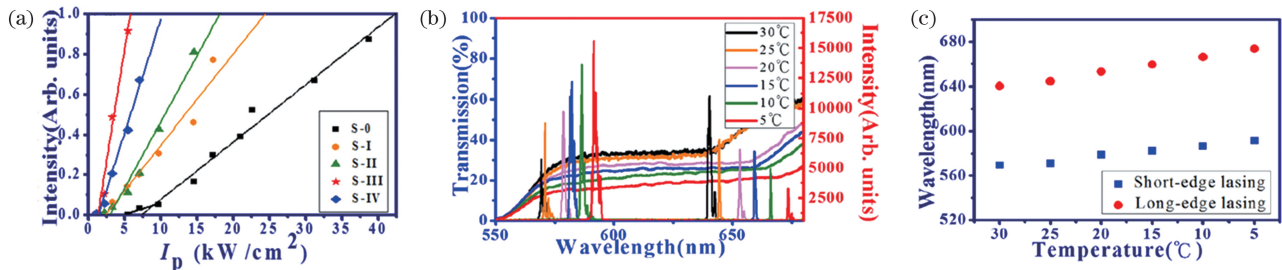


图 17 不同尺寸的 AgNPs 和温度下 DD-CLC 随机激光的性能<sup>[85]</sup>。(a)不同尺寸的 AgNPs 对 DD-CLC 随机激光斜率效率和激光阈值的影响;(b) S-IV 样品的带边激光峰位随温度的变化;(c)长带边激光峰和短带边激光峰波长的移位与温度的关系

Fig. 17 Performance of DD-CLC random laser with different sizes of AgNPs and temperatures<sup>[85]</sup>. (a) Effects of different sizes of AgNPs on slope efficiency and laser threshold of DD-CLC random laser; (b) temperature-dependent band-edge laser peak positions from S-IV sample; (c) temperature-dependent wavelength shifts of long band-edge laser and short band-edge laser peaks

尽管在等离子增强液晶随机激光研究方面已经取得了一些进展,但是金属纳米粒子对液晶随机激光产生中的影响及其物理机制还尚未完全清楚,有待进一步研究和分析,从而可以更好地优化液晶随机激光的性能并发展其应用。

## 7 结 论

从不同的角度梳理了液晶随机激光器的工作原理,并从不同液晶相(向列相、胆甾相、BP)和等离子增强的角度重点介绍了近期液晶随机激光的研究进展。尽管目前已经发展出多种模型来解释随机激光器的各种现象,但液晶随机激光的物理机制还有待进一步探索。随着研究的深入,液晶随机激光器的性能在逐步提高,激光阈值在逐步下降,多种调控方式(电、磁、热、偏振)百花齐放。这对于液晶随机激光器的实际应用和商业化有巨大的意义。尽管液晶随机激光器的研究取得很大的进展,但是仍然存在许多问题,未来液晶随机激光器要进一步应用于实际场景,还需着重推进以下几个方面的研究:

1) 进一步降低激光阈值,有利于扩大液晶随机激光器的应用范围<sup>[98]</sup>; 2) 通过设计外加结构,改善随机激光的出射方向、偏振特性等<sup>[99-101]</sup>; 3) 进一步发展电泵浦随机激光器,使随机激光更好地应用于显示等领域<sup>[102]</sup>; 4) 改善液晶与增益材料(如钙钛矿<sup>[14]</sup>、胶体量子点<sup>[103]</sup>)的互溶性,获得更优性能的随机激光。相信在不久的将来,液晶随机激光器会在多个领域中发挥其独特的作用,并推动相关领域及技术的应用与发展。

## 参 考 文 献

- [1] Letokhov V S. Generation of light by a scattering medium with negative resonance absorption [J]. Soviet Journal of Experimental and Theoretical Physics, 1968, 26(4): 835-840.
- [2] Lawandy N M, Balachandran R M, Gomes A S L, et al. Laser action in strongly scattering media [J]. Nature, 1994, 368(6470): 436-438.
- [3] Wiersma D S, van Albada M P, Lagendijk A. Random laser? [J]. Nature, 1995, 373(6511): 203-204.



- [4] Cao H, Zhao Y G, Ho S T, et al. Random laser action in semiconductor powder[J]. *Physical Review Letters*, 1999, 82(11): 2278-2281.
- [5] Noginov M A, Zhu G, Fowlkes I, et al. GaAs random laser[J]. *Laser Physics Letters*, 2004, 1(6): 291-293.
- [6] Lee C R, Lin S H, Guo C H, et al. All-optically controllable random laser based on a dye-doped polymer-dispersed liquid crystal with nano-sized droplets[J]. *Optics Express*, 2010, 18(3): 2406-2412.
- [7] Dice G D, Mujumdar S, Elezzabi A Y. Plasmonically enhanced diffusive and subdiffusive metal nanoparticle-dye random laser[J]. *Applied Physics Letters*, 2005, 86(13): 131105.
- [8] Lee C R, Lin S H, Guo J W, et al. Electrically and thermally controllable nanoparticle random laser in a well-aligned dye-doped liquid crystal cell[J]. *Optical Materials Express*, 2015, 5(6): 1469-1481.
- [9] Dominguez C T, Maltez R L, dos Reis R M S, et al. Dependence of random laser emission on silver nanoparticle density in PMMA films containing rhodamine 6G[J]. *Journal of the Optical Society of America B*, 2011, 28(5): 1118-1123.
- [10] Germano G C M, Machado Y D R, Martinho L, et al. Flexible random lasers in dye-doped biodegradable cellulose nanocrystalline needles [J]. *Journal of the Optical Society of America B*, 2019, 37(1): 24-29.
- [11] Mendicuti E, Käferlein O, García-Segundo C. Random laser emission from whole blood as the active medium[J]. *Optics Letters*, 2021, 46(2): 274-277.
- [12] Strangi G, Ferjani S, Barna V, et al. Random lasing and weak localization of light in dye-doped nematic liquid crystals[J]. *Optics Express*, 2006, 14(17): 7737-7744.
- [13] Yang T H, Chen C W, Jau H C, et al. Liquid-crystal random fiber laser for speckle-free imaging [J]. *Applied Physics Letters*, 2019, 114(19): 191105.
- [14] Liu Y L, Yang W H, Xiao S M, et al. Surface-emitting perovskite random lasers for speckle-free imaging[J]. *ACS Nano*, 2019, 13(9): 10653-10661.
- [15] Polson R C, Vardeny Z V. Random lasing in human tissues[J]. *Applied Physics Letters*, 2004, 85(7): 1289-1291.
- [16] Wiersma D S, Cavalieri S. A temperature-tunable random laser[J]. *Nature*, 2001, 414(6865): 708-709.
- [17] Boschetti A, Taschin A, Bartolini P, et al. Spectral super-resolution spectroscopy using a random laser [J]. *Nature Photonics*, 2020, 14(3): 177-182.
- [18] Sebbah P, Carminati R. Breakthroughs in photonics 2014: random lasers [J]. *IEEE Photonics Journal*, 2015, 7(3): 1-7.
- [19] Pradhan P, Kumar N. Localization of light in coherently amplifying random media [J]. *Physical Review B*, 1994, 50(13): 9644-9647.
- [20] Jiang X, Soukoulis C M. Time dependent theory for random lasers[J]. *Physical Review Letters*, 2000, 85(1): 70-73.
- [21] Vanneste C, Sebbah P. Selective excitation of localized modes in active random media[J]. *Physical Review Letters*, 2001, 87(18): 183903.
- [22] Wiersma D S, van Albada M P, Lagendijk A. Coherent backscattering of light from amplifying random media[J]. *Physical Review Letters*, 1995, 75(9): 1739-1742.
- [23] Anderson P W. Absence of diffusion in certain random lattices[J]. *Physical Review*, 1958, 109(5): 1492-1505.
- [24] Cao H, Xu J Y, Ling Y, et al. Random lasers with coherent feedback [J]. *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics*, 2003, 9(1): 111-119.
- [25] Florescu L, John S. Photon statistics and coherence in light emission from a random laser[J]. *Physical Review Letters*, 2004, 93(1): 013602.
- [26] Cao H, Ling Y, Xu J Y, et al. Photon statistics of random lasers with resonant feedback [J]. *Physical Review Letters*, 2001, 86(20): 4524-4527.
- [27] Cao H, Xu J Y, Zhang D Z, et al. Spatial confinement of laser light in active random media[J]. *Physical Review Letters*, 2000, 84(24): 5584-5587.
- [28] Ioffe A F, Regel A R. Non-crystalline, amorphous and liquid electronic semiconductors [J]. *Prog. Semicond*, 1960, 4(89): 237-291.
- [29] Apalkov V M, Raikh M E, Shapiro B. Random resonators and prelocalized modes in disordered dielectric films[J]. *Physical Review Letters*, 2002, 89(1): 016802.
- [30] Mujumdar S, Ricci M, Torre R, et al. Amplified extended modes in random lasers [J]. *Physical Review Letters*, 2004, 93(5): 053903.
- [31] Ye Y X, Fan D Y. Incoherent radiation of amplifying random media[J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2007, 34(3): 364-369.
- 叶云霞, 范滇元. 增益随机散射介质中的非相干辐射 [J]. *中国激光*, 2007, 34(3): 364-369.
- [32] Türeci H E, Ge L, Rotter S, et al. Strong interactions in multimode random lasers[J]. *Science*, 2008, 320(5876): 643-646.

- [33] Yamilov A, Cao H. Highest-quality modes in disordered photonic crystals[J]. *Physical Review A*, 2004, 69(3): 031803.
- [34] Liu J S, Wang C, Xiong Z. Origin of light localization from orientational disorder in one- and two-dimensional random media with uniaxial scatterers[J]. *Physical Review B*, 2006, 73(19): 195110.
- [35] Liu Y J, Sun X W, Elim H I, et al. Gain narrowing and random lasing from dye-doped polymer-dispersed liquid crystals with nanoscale liquid crystal droplets [J]. *Applied Physics Letters*, 2006, 89(1): 011111.
- [36] Ye L H, Hou C, Lü C G, et al. Tailoring of random lasing characteristics in dye-doped nematic liquid crystals[J]. *Applied Physics B*, 2014, 115(3): 303-309.
- [37] Ferjani S, de Luca A, Barna V, et al. Thermo-recurrent nematic random laser[J]. *Optics Express*, 2009, 17(3): 2042-2047.
- [38] He B Q, Liao Q, Huang Y. Random lasing in a dye doped cholesteric liquid crystal polymer solution[J]. *Optical Materials*, 2008, 31(2): 375-379.
- [39] Lin S H, Chen P Y, Li Y H, et al. Manipulation of polarized random lasers from dye-doped twisted nematic liquid crystals within wedge cells[J]. *IEEE Photonics Journal*, 2017, 9(2): 1-8.
- [40] Bian H T, Yao F F, Liu H, et al. Optically controlled random lasing based on photothermal effect in dye-doped nematic liquid crystals [J]. *Liquid Crystals*, 2014, 41(10): 1436-1441.
- [41] Dai G, Wang L, Deng L G. Flexible random laser from dye doped stretchable polymer film containing nematic liquid crystal[J]. *Optical Materials Express*, 2020, 10(1): 68-75.
- [42] Naruta T, Akita T, Uchida Y, et al. Magnetically controllable random laser in ferromagnetic nematic liquid crystals[J]. *Optics Express*, 2019, 27(17): 24426-24433.
- [43] Dai H T, Chen L, Zhang B, et al. Optically isotropic, electrically tunable liquid crystal droplet arrays formed by photopolymerization-induced phase separation[J]. *Optics Letters*, 2015, 40(12): 2723-2726.
- [44] Li K, Jiang H D, Cheng M, et al. Controlling morphological and electro-optical properties via the phase separation in polymer/liquid-crystal composite materials[J]. *Liquid Crystals*, 2020, 47(2): 238-247.
- [45] Saeed M H, Zhang S F, Cao Y P, et al. Recent advances in the polymer dispersed liquid crystal composite and its applications[J]. *Molecules*, 2020, 25(23): 5510.
- [46] Kim M, Park K J, Seok S, et al. Fabrication of microcapsules for dye-doped polymer-dispersed liquid crystal-based smart windows [J]. *ACS Applied Materials & Interfaces*, 2015, 7(32): 17904-17909.
- [47] Lai Y T, Kuo J C, Yang Y J. A novel gas sensor using polymer-dispersed liquid crystal doped with carbon nanotubes [J]. *Sensors and Actuators A: Physical*, 2014, 215: 83-88.
- [48] Xiong G R, Han G Z, Sun C, et al. Phototunable microlens array based on polymer dispersed liquid crystals[J]. *Advanced Functional Materials*, 2009, 19(7): 1082-1086.
- [49] Labeeb A M, Ibrahim S A, Ward A A, et al. Polymer/liquid crystal nanocomposites for energy storage applications [J]. *Polymer Engineering & Science*, 2020, 60(10): 2529-2540.
- [50] Lin J H, Hsiao Y L. Manipulation of the resonance characteristics of random lasers from dye-doped polymer dispersed liquid crystals in capillary tubes [J]. *Optical Materials Express*, 2014, 4(8): 1555-1563.
- [51] Ahmad F, Jamil M, Jeon Y J. Advancement trends in dye-doped polymer dispersed liquid crystals: a survey review [J]. *Molecular Crystals and Liquid Crystals*, 2017, 648(1): 88-113.
- [52] Ye L H, Li F J, Lu C G, et al. The controllable intensity and polarization degree of random laser from sheared dye-doped polymer-dispersed liquid crystal [J]. *Nanophotonics*, 2017, 7(2): 473-478.
- [53] Dai H T, Gao M N, Xue Y X, et al. Magnetically tunable random lasing from polymer dispersed liquid crystal doped ferromagnetic nanoparticles in capillary [J]. *AIP Advances*, 2019, 9(11): 115015.
- [54] Wang D S, Chen M Z, Dai H T, et al. Optically tunable random lasing from azo-dye-doped polymer dispersed liquid crystal in capillary tubes[J]. *Chinese Journal of Liquid Crystals and Displays*, 2019, 34(10): 935-944.
- 王东硕, 陈茂洲, 戴海涛, 等. 光调控的偶氮染料掺杂聚合物分散液晶微管随机激光器(英文)[J]. *液晶与显示*, 2019, 34(10): 935-944.
- [55] Coles H, Morris S. Liquid-crystal lasers[J]. *Nature Photonics*, 2010, 4(10): 676-685.
- [56] Pieraccini S, Masiero S, Ferrarini A, et al. Chirality transfer across length-scales in nematic liquid crystals: fundamentals and applications[J]. *Chemical Society Reviews*, 2011, 40(1): 258-271.
- [57] Bisoyi H K, Li Q. Light-directing chiral liquid crystal nanostructures: from 1D to 3D[J]. *Accounts of Chemical Research*, 2014, 47(10): 3184-3195.

- [58] Bisoyi H K, Bunning T J, Li Q. Stimuli-driven control of the helical axis of self-organized soft helical superstructures [J]. *Advanced Materials*, 2018, 30(25): 1706512.
- [59] Mitov M. Cholesteric liquid crystals with a broad light reflection band [J]. *Advanced Materials*, 2012, 24(47): 6260-6276.
- [60] Lin J D, Lin H Y, Wei G J, et al. A broadband-tunable photonic bandgap and thermally convertible laser with an ultra-low lasing threshold from a refilled chiral polymer template [J]. *Journal of Materials Chemistry C*, 2019, 7(16): 4740-4747.
- [61] Ranjkesh A, Yoon T H. Thermal and electrical wavelength tuning of Bragg reflection with ultraviolet light absorbers in polymer-stabilized cholesteric liquid crystals [J]. *Journal of Materials Chemistry C*, 2018, 6(45): 12377-12385.
- [62] Wang H, Bisoyi H K, Urbas A M, et al. Reversible circularly polarized reflection in a self-organized helical superstructure enabled by a visible-light-driven axially chiral molecular switch [J]. *Journal of the American Chemical Society*, 2019, 141(20): 8078-8082.
- [63] Zhang Y F, Yuan Z Y, Qiao Z, et al. Tunable microlasers modulated by intracavity spherical confinement with chiral liquid crystal [J]. *Advanced Optical Materials*, 2020, 8(10): 1902184.
- [64] Li Y, Luo D. Fabrication and application of 1D micro-cavity film made by cholesteric liquid crystal and reactive mesogen [J]. *Optical Materials Express*, 2016, 6(2): 691-696.
- [65] Zhan X Y, Fan H P, Li Y, et al. Low threshold polymerised cholesteric liquid crystal film lasers with red, green and blue colour [J]. *Liquid Crystals*, 2019, 46(6): 970-976.
- [66] Park S, Lee S S, Kim S H. Photonic multishells composed of cholesteric liquid crystals designed by controlled phase separation in emulsion drops [J]. *Advanced Materials*, 2020, 32(30): 2002166.
- [67] Morris S M, Gardiner D J, Hands P J W, et al. Electrically switchable random to photonic band-edge laser emission in chiral nematic liquid crystals [J]. *Applied Physics Letters*, 2012, 100(7): 071110.
- [68] Huang W B, Yuan C L, Shen D, et al. Dynamically manipulated lasing enabled by a reconfigured fingerprint texture of a cholesteric self-organized superstructure [J]. *Journal of Materials Chemistry C*, 2017, 5(28): 6923-6928.
- [69] Lu H B, Xing J, Wei C, et al. Band-gap-tailored random laser [J]. *Photonics Research*, 2018, 6(5): 390-395.
- [70] Lu H B, Yang L, Xia L, et al. Band-edge-enhanced tunable random laser using a polymer-stabilised cholesteric liquid crystal [J]. *Liquid Crystals*, 2021, 48(2): 255-262.
- [71] Ye L H, Wang Y, Feng Y Y, et al. Thermally switchable photonic band-edge to random laser emission in dye-doped cholesteric liquid crystals [J]. *Laser Physics Letters*, 2018, 15(3): 035002.
- [72] Gao S H, Wang J Y, Li W H, et al. Low threshold random lasing in dye-doped and strongly disordered chiral liquid crystals [J]. *Photonics Research*, 2020, 8(5): 642-647.
- [73] Stegemeyer H, Blümel T H, Hiltrop K, et al. Thermodynamic, structural and morphological studies on liquid-crystalline blue phases [J]. *Liquid Crystals*, 1986, 1(1): 3-28.
- [74] Kitzerow H S, Bahr C. Chirality in liquid crystals [M]. New York: Springer, 2001: 186-218.
- [75] Li Y, Huang S J, Zhou P C, et al. Polymer-stabilized blue phase liquid crystals for photonic applications [J]. *Advanced Materials Technologies*, 2016, 1(8): 1600102.
- [76] Chen Y, Wu S T. Recent advances on polymer-stabilized blue phase liquid crystal materials and devices [J]. *Journal of Applied Polymer Science*, 2014, 131(15): 4525-4529.
- [77] Kikuchi H, Yokota M, Hisakado Y, et al. Polymer-stabilized liquid crystal blue phases [J]. *Nature Materials*, 2002, 1(1): 64-68.
- [78] Lin T H, Chen C W, Jau H C, et al. Lasing effect in blue phase liquid crystal [J]. *Proceedings of SPIE*, 2013, 8828: 882808.
- [79] Chen C W, Jau H C, Wang C T, et al. Random lasing in blue phase liquid crystals [J]. *Optics Express*, 2012, 20(21): 23978-23984.
- [80] Khoo I C, Lin T H. Nonlinear optical grating diffraction in dye-doped blue-phase liquid crystals [J]. *Optics Letters*, 2012, 37(15): 3225-3227.
- [81] Liao R C, Zhan X Y, Xu X W, et al. Spatially and electrically tunable random lasing based on a polymer-stabilised blue phase liquid crystal-wedged cell [J]. *Liquid Crystals*, 2020, 47(5): 715-722.
- [82] Chauhan S, Mukherjee S, Varanytsia A, et al. Efficient random lasing in topologically directed assemblies of blue-phase liquid crystal microspheres [J]. *Optical Materials Express*, 2020, 10(9): 2030-2044.
- [83] Wang L, Wang M, Yang M C, et al. Bichromatic coherent random lasing from dye-doped polymer stabilized blue phase liquid crystals controlled by pump light polarization [J]. *Chinese Physics B*,



- 2016, 25(9): 094217.
- [84] Vaveliuk P, de Brito Silva A M, de Oliveira P C. Model for bichromatic laser emission from a laser dye with nanoparticle scatterers[J]. *Physical Review A*, 2003, 68(1): 013805.
- [85] Chang S H, Wu J J, Kuo C C, et al. Plasmonic random laser from dye-doped cholesteric liquid crystals incorporating silver nanoprisms[J]. *Optics Letters*, 2020, 45(18): 5144-5147.
- [86] Ziegler J, Djiango M, Vidal C, et al. Gold nanostars for random lasing enhancement[J]. *Optics Express*, 2015, 23(12): 15152-15159.
- [87] Liu Q K, Yuan Y, Smalyukh I I. Electrically and optically tunable plasmonic guest-host liquid crystals with long-range ordered nanoparticles [J]. *Nano Letters*, 2014, 14(7): 4071-4077.
- [88] Mertelj A, Lišjak D, Drofenik M, et al. Ferromagnetism in suspensions of magnetic platelets in liquid crystal[J]. *Nature*, 2013, 504(7479): 237-241.
- [89] Liu Q K, Senyuk B, Tang J W, et al. Plasmonic complex fluids of nematiclike and helicoidal self-assemblies of gold nanorods with a negative order parameter[J]. *Physical Review Letters*, 2012, 109(8): 088301.
- [90] Rožič B, Fresnais J, Molinaro C, et al. Oriented gold nanorods and gold nanorod chains within smectic liquid crystal topological defects [J]. *ACS Nano*, 2017, 11(7): 6728-6738.
- [91] Liu Q K, Cui Y X, Gardner D, et al. Self-alignment of plasmonic gold nanorods in reconfigurable anisotropic fluids for tunable bulk metamaterial applications[J]. *Nano Letters*, 2010, 10(4): 1347-1353.
- [92] Bisoyi H K, Kumar S. Liquid-crystal nanoscience: an emerging avenue of soft self-assembly[J]. *Chemical Society Reviews*, 2011, 40(1): 306-319.
- [93] Wang L, Wan Y, Shi L J, et al. Electrically controllable plasmonic enhanced coherent random lasing from dye-doped nematic liquid crystals containing Au nanoparticles [J]. *Optics Express*, 2016, 24(16): 17593-17602.
- [94] Li L W, Deng L G. Low threshold and coherent random lasing from dye-doped cholesteric liquid crystals using oriented cells [J]. *Laser Physics*, 2013, 23(8): 085001.
- [95] Wang C, Deng L G. Electrically controlled plasmonic lasing resonances with silver nanoparticles embedded in amplifying nematic liquid crystals [J]. *Laser Physics Letters*, 2014, 11(11): 115814.
- [96] Wan Y, An Y, Deng L. Plasmonic enhanced low-threshold random lasing from dye-doped nematic liquid crystals with TiN nanoparticles in capillary tubes[J]. *Scientific Reports*, 2017, 7(1): 16185.
- [97] Wan Y, Deng L G. Pump-controlled plasmonic random lasers from dye-doped nematic liquid crystals with TiN nanoparticles in non-oriented cells [J]. *Applied Sciences*, 2019, 10(1): 199.
- [98] Roy P K, Haider G, Lin H I, et al. Random lasers: multicolor ultralow-threshold random laser assisted by vertical-graphene network [J]. *Advanced Optical Materials*, 2018, 6(16): 1870063.
- [99] Schönhuber S, Brandstetter M, Hisch T, et al. Random lasers for broadband directional emission[J]. *Optica*, 2016, 3(10): 1035-1038.
- [100] Wu R N, Lu J Q, Yang F, et al. Features of liquid crystal laser in SU-8 grating structure[J]. *Chinese Journal of Luminescence*, 2020, 41(1): 71-76.  
乌日娜, 卢佳琦, 杨帆, 等. SU-8 光栅结构中的液晶激光特性[J]. *发光学报*, 2020, 41(1): 71-76.
- [101] Chen M Z, Dai H T, Wang D S, et al. Thermally and optically tunable lasing properties from dye-doped holographic polymer dispersed liquid crystal in capillaries[J]. *Journal of Applied Physics*, 2018, 123(10): 103105.
- [102] Ma X Y, Pan J W, Chen P L, et al. Room temperature electrically pumped ultraviolet random lasing from ZnO nanorod arrays on Si[J]. *Optics Express*, 2009, 17(16): 14426-14433.
- [103] Wang Z W, Cao M X, Shao G R, et al. Coherent random lasing in colloidal quantum dot-doped polymer-dispersed liquid crystal with low threshold and high stability [J]. *The Journal of Physical Chemistry Letters*, 2020, 11(3): 767-774.

# Liquid Crystal Random Laser: Principles and Research Progresses

Cai Wenfeng, Li Ye, Tang Zongyuan, He Huilin, Wang Jiawei, Luo Dan, Liu Yanjun\*

*Department of Electrical and Electronic Engineering, Southern University of Science & Technology, Shenzhen, Guangdong 518055, China*

## Abstract

**Significance** A random laser necessitates not a physical resonator, but multiple scattering of photons in an active random medium to bring optical feedback to reach the threshold. This unique principle signifies that random lasers have several characteristics to distinguish them from conventional lasers. Firstly, without a resonant feedback, random lasers can be any geometries, which indicates it reduced greatly manufacturing difficulty and cost. Secondly, the emission spectrum has multiple narrow spikes, which can be tuned by changing the pump conditions or environment. Thirdly, random lasers have low spatial coherence and large emission angle. Endowing with these superior features, random lasers have been widely used in speckle-free imaging, temperature sensing, medical diagnosis and super-resolution spectrum.

After decades of development, scientists have explored a variety of materials as scattering media. Among them, liquid crystals are ideal scattering medium with a tunable disordered degree of the system and orientation of dye molecules. As a result, the laser characteristics of liquid crystal random laser, including threshold, intensity, and polarization, can be well controlled, which provides many potential opportunities for various applications of random lasers.

**Progress** In 1968, Letokhov predicted the existence of random laser theoretically. Scattering of particles increases the distance that photons travel through the medium. The energy density of photons will increase exponentially with time as the strength of scattering and pumping energy increases. If the gain depends on wavelength, the light at this wavelength has a competitive advantage and can be further amplified to form a narrow-band spectrum, which is called spontaneous emission amplification. Meanwhile, the threshold of spontaneous emission amplification in random scattering medium is similar to that of traditional laser. Until 1994, Lawandy confirmed Letokhov's prediction by observing narrow-band emission peaks in amplifying random medium. In 1999, the Cao's group observed several discrete radiation peaks with very narrow spectral linewidth. The results proved the existence of coherent feedback in the random laser.

Since the interference effect caused by strong scattering is not considered in Letokhov's theory, the mechanism of the random laser cannot be well explained. In 1999, Cao used ring resonator theory to explain the localization of the random laser. She proposed that in the case of strong scattering, the photon may return to the scatterer from which it was scattered before, creating a closed loop, which plays the role of laser resonator. When the gain of the photon in the closed loop becomes larger than the loss, laser oscillation occurs. Due to the complexity of random laser, up to now there is not an accepted and complete theory that can fully explain the various characteristics of random lasers.

In 2006, Liu Jinsong's group used FDTD simulation to study the influence of the degree of orientational disorder of uniaxial scattering medium on the random laser mode in one-dimensional and two-dimensional systems. The results showed that with the increase of the orientational disorder of the liquid crystals, the scattering degree of the system increases gradually, leading to the occurrence of a random laser. Since the orientation of liquid crystal molecules can be adjusted in a variety of ways, we can use liquid crystals to regulate the disorder of the system, and thus improve the laser's  $Q$ -value.

For nematic liquid crystals random lasers, Ye *et al.* studied the influence of the liquid crystal cell thickness on the random laser action in the dye-doped nematic liquid crystals system (Fig. 1). Subsequently, Lin *et al.* investigated the polarization properties of dye-doped twisted nematic liquid crystals in a wedge-shaped cell. In 2019, Naruta *et al.* prepared a dye-doped random laser with ferromagnetic nematic liquid crystal, which could be tuned by the magnetic force. In 2006, Liu *et al.* studied the characteristics of dye-doped polymer-dispersed liquid crystals (DD-PDLC) random laser (Fig. 6). In 2019, Dai *et al.* realized the magnetically tunable DD-PDLC random laser by doping magnetic nanoparticle. Lee *et al.* previously proposed an optically controlled method of DD-PDLC random laser by doping the azo dye.

For cholesteric liquid crystal (CLC) random laser, in 2012, Morris *et al.* realized selective emission of random lasers and band-edge laser by changing the frequency of the applied electric field (Fig. 9). In addition, Huang *et al.* proposed a CLC finger texture reconstruction method based on electric field induction, resulting in flexible modulation of laser wavelength and multiple modes (Fig. 10). In 2018, Hu *et al.* utilized liquid crystal multiple scattering and near-infrared controlled photothermally band gap tuning to achieve a random laser. In 2020, the group also constructed polymer-stabilized CLC to achieve random laser emission with low coherence and wide tuning range (100 nm) at the band edge.

For blue phase liquid crystal (BPLC) and polymer-stabilized blue phase liquid crystal (PS-BPLC), Lin *et al.* studied random lasers based on coherent feedback in BPLC and PS-BPLC in 2012 (Fig. 11). In 2020, Luo's group demonstrated a spatially and electrically tunable random lasing based on PS-BPLC-wedged cell (Fig. 12). In 2020, Chauhan *et al.* proposed a random laser based on spatially-assembled dye-doped BPLC microdroplets (Fig. 14). Wang *et al.* studied bichromatic coherent random laser from dye-doped PS-BPLC controlled by pump light polarization.

When metal nanoparticles are combined with a disordered active medium, the scattering intensity can be significantly increased. In addition, it can increase the laser gain and reduce the random laser threshold through localized surface plasmon resonances (LSPR). Deng's group has done a lot of research on the plasmon-enhanced liquid crystal random laser.

**Conclusion and Prospect** Though there is significant progress on the liquid crystal random lasers, their mechanisms remain to be further explored. Future development can be made in the following aspects including further reduced threshold, directionality and polarizations, electrical pumping, miscibility between liquid crystals and novel gain media, etc. Significant performance improvement of liquid crystal random lasers is of great importance for the practical applications and commercialization.

**Key words** lasers; random laser; liquid crystal; multiple scattering; diffusion

**OCIS codes** 140.3460; 160.3710; 290.4210; 290.1990