

文章编号 : 0253-2239(2001)06-0712-04

# 宽带波长可调固体染料光放大的实现\*

彭 翔 徐 雷 侯占佳 刘丽英 王文澄 李富铭

(复旦大学物理系三束材料改性国家重点实验室, 上海 200433)

摘要: 对有机染料 4-Dicyanomethylene-2-methyl-6-(p-dimethylaminostyryl)-4H-pyran (DCM) 掺杂的 PMMA (聚甲基丙烯酸甲酯) 以及 DCM 掺杂的 PMMA/凝胶玻璃复合材料平面光波导中的放大自发辐射进行了研究。实验表明, 通过合理地控制波导层的折射率及厚度, 可以在较宽范围内选择放大自发辐射的波长, 从而实现波长调谐, 波长调谐范围可达 30 nm。该方法可应用于固体可调谐激光器及光放大器的宽带调谐。

关键词: 放大自发辐射; 平面光波导; 有机/无机复合材料

中图分类号: O432.1<sup>†</sup>2 文献标识码: A

## 1 引 言

有机染料掺杂的平面光波导中的放大自发辐射现象被广泛研究<sup>[1]</sup>。有机染料在平面光波导中容易实现高功率密度下的可调谐性及高效率, 因此基于有机染料掺杂的平面光波导及其器件具有广泛的应用前景。对于固体可调谐染料激光器, 一般通过改变染料掺杂浓度<sup>[2]</sup>以及利用外腔调谐<sup>[3,4]</sup>等来实现波长调谐。本文介绍一种新的光波导模式调谐方法, 适用于固体可调谐激光器的宽带调谐。

在给定的光波导折射率和厚度的前提下, 放大自发辐射在光波导中具有一定的传播模式。传播模式由折射率和波导层厚度决定<sup>[5]</sup>。考虑到折射率随波长变化的色散关系, 传播模式与波长也直接相关。基于以上两点, 通过选择平面光波导层的厚度, 使之处于不同波长处的零阶模截止厚度, 即可实现放大自发辐射的波长选择和调谐。

PMMA 是一种常用的有机基质材料, 其折射率为 1.49。人们对这一类主客体掺杂体系的光放大光学性质进行了广泛的研究<sup>[6]</sup>。SiO<sub>2</sub> 凝胶玻璃是一种无机基质材料, 折射率可达 1.45。溶胶-凝胶技术提供了一种合成兼有有机和无机材料特性的有机/无机复合材料的方法<sup>[7]</sup>。这种合成复合材料的方法简单, 且制备的材料具有许多独特的优点和广泛的应用价值<sup>[8]</sup>。在本文中, 通过改变有机/无机材料的复合比例, 可以调整波导层的折射率, 同时通过

对波导层厚度的有效控制, 实现了放大自发辐射在平面光波导中传播的波长选择和调谐。

## 2 实 验

### 2.1 样品制备

本工作所用的 PMMA 的平均分子量约为 30 万, 将之与 TEOS (正硅酸乙酯) 共溶于适量的 THF (四氢呋喃) 溶液中, 加入浓度为 0.15 mol/L 的盐酸, 使 TEOS 充分水解, 其中硅与水的物质的量的比为 1:4。所制备的样品中 PMMA 与 TEOS 的物质的量的比为 1:1。将适量的 DCM (分子式为 C<sub>19</sub>H<sub>17</sub>N<sub>3</sub>O) 加入样品溶液中, 搅拌至完全溶解后, 用 0.22 μm 的针筒过滤器去除不溶杂质, 然后采用提拉法成膜在清洁的派热克斯 (Pyrex) 玻璃上。所用的派热克斯玻璃尺寸为 20 mm × 30 mm, 厚度为 1 mm, 前后表面及两侧面均经光学抛光, 折射率为 1.471 (633 nm)。最后将膜烘 20 分钟, 所制得的膜呈橙色, 透明性好, 且膜成楔形, 如图 1 所示。用棱镜耦合法测量样品膜的折射率为 1.473 (633 nm)。

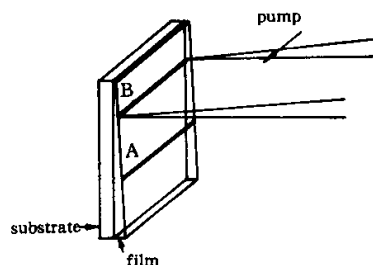


Fig. 1 The sample wedge structure and the transverse pump style. Position B's thickness is smaller than A's

\* 国家自然科学基金 (69808001) 国家科委攀登项目子课题及教育部跨世纪优秀人才基金。

† 收稿日期 2000-01-19; 收到修改稿日期 2000-07-01

此外,作为对比,将适量的 PMMA 溶于 THF 中,加入适量的 DCM,采用提拉法制备了 DCM/PMMA 膜,在 633 nm 波长处用棱镜耦合法测量样品的折射率为 1.489。

## 2.2 样品吸收光谱的测量

采用 UV-3101PC 型岛津紫外-可见分光光度计在室温常压下测量样品的吸收光谱。

## 2.3 样品荧光光谱及放大自发辐射光谱的测量

测量装置如图 2 所示。以调 Q 的 Nd:YAG 激光器 (1.064  $\mu\text{m}$ ) 的倍频光 (532 nm) 作为抽运光,脉冲宽度为 10 ns,重复频率为 10 Hz,532 nm 的抽运能量在 0.4 mJ/pulse ~ 12 mJ/pulse 范围内连续可调。将圆形光斑通过光阑、会聚透镜 ( $f = 5\text{ cm}$ ) 和柱面镜 ( $f = 15\text{ cm}$ ) 后聚焦成长度在 2 cm ~ 3 cm 的线形光斑,垂直抽运样品 (见图 1)。用光纤在光波导中放大自发辐射的出射方向收集放大自发辐射信号,在非放大自发辐射出射方向收集荧光信号,将信号导入 0.34 m 的光栅光谱仪后由光学多道分析系统 (OMA III) 进行接收,数据由计算机进行处理。整个测量过程均在室温常压下进行。

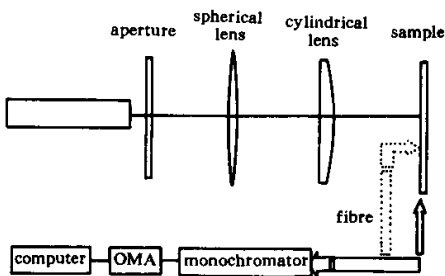


Fig. 2 Experimental setup

## 3 结果与讨论

图 3 所示为 DCM/PMMA 平面光波导样品的放大自发辐射随抽运能量变化关系图。随着抽运能量由 0.4 mJ/pulse 增大至 11.5 mJ/pulse,放大自发辐射的强度增加,光谱的半宽由 17.6 nm 减小至 7.8 nm,位于 608 nm 的峰位无明显移动。DCM/PMMA 样品的荧光光谱半宽约为 90 nm,而 0.4 mJ/pulse 时的光谱半宽为 17.6 nm,因此放大自发辐射阈值一定小于 0.4 mJ/pulse,这一阈值在相关文献报道中是较低的。

由图中可以看出,荧光光谱与吸收光谱有交叠区,在平面光波导对传播波长没有限制的前提下,放大自发辐射峰的位置由 DCM 的吸收光谱和荧光光谱共同决定。故放大自发辐射峰位并不与荧光光谱

的峰位重合,而是出现在远离吸收边的 608 nm 处;显而易见的是,该波长处的增益系数最大。当改变平面光波导的折射率或厚度,使之对能在其中传播的波长有限制时,放大自发辐射的峰位还由平面波导层的折射率和厚度决定。由于制备的样品膜成楔形,当将抽运光垂直抽运楔形样品的不同位置,即改变波导层的厚度时,观察到了放大自发辐射波长的移动。放大自发辐射峰 A 和峰 B 分别对应抽运光垂直抽运楔形样品的不同位置 A 和 B。A 处波导层厚度大于 B 处波导层厚度,如图 1 所示。放大自发辐射峰 A 位于 608 nm,半宽为 7 nm,对应波导层厚度为 1.80  $\mu\text{m}$ ;放大自发辐射峰 B 位于 578 nm,半宽为 6 nm,对应波导层厚度为 1.74  $\mu\text{m}$ 。峰 B 比峰 A 蓝移了 30 nm。

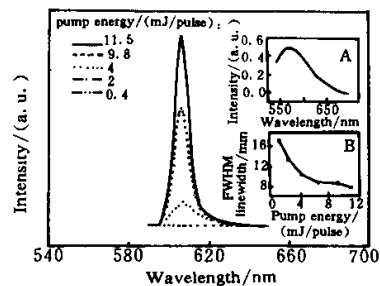


Fig. 3 ASE of DCM/PMMA sample depending on the pump-pulse energy. The insert A and B show the fluorescent spectrum and the FWHM linewidth depending on the pump-pulse energy of the same sample, respectively

图 4 所示的为 DCM/PMMA/TEOS 平面光波导样品的吸收光谱 (D)、荧光光谱 (C) 以及放大自发辐射光谱 (A、B)。测量荧光光谱及放大自发辐射光谱时的抽运能量均为 6 mJ/pulse。样品的吸收峰位在 460 nm,长波方向的吸收尾位于 605 nm,荧光光谱峰位在 582 nm,半宽约为 90 nm。

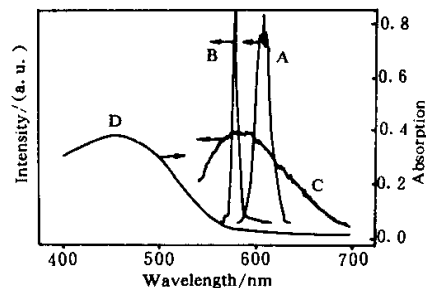


Fig. 4 Amplified spontaneous emission spectrum (A and B), fluorescent emission spectrum (C) and absorptions spectrum (D) of DCM/PMMA/TEOS sample. The pump wavelength of A, B and C are 532 nm.

我们认为,放大自发辐射峰位蓝移的原因是波

导模式对放大自发辐射的限制。对正常色散介质, 波长越短, 折射率越大, 对非对称平面光波导而言, 导模截止厚度越小。所以波导膜厚较薄时, 短波长的光更容易保证单模条件, 而对长波长的光, 膜厚较薄时, 由于折射率较小, 形成不了导模, 使形成波导放大自发辐射的条件不能满足。这就是放大自发辐射峰 B 比峰 A 蓝移的原因。

另外还观察到放大自发辐射峰 B 比峰 A 的半宽减小了约 1 nm, 半宽压缩来自于吸收与截止波长的共同限制。波长越短, 吸收系数越大, 即增益越小, 故而放大自发辐射峰值只能出现在由膜厚及折射率所确定的截止波长处。当连续改变抽运光位置, 使抽运光垂直抽运楔形样品的不同厚度, 由位置 A 移到位置 B, 我们观察到了放大自发辐射波长由 608 nm 连续地移至 578 nm, 即实现了波长调谐, 如图 5 所示。

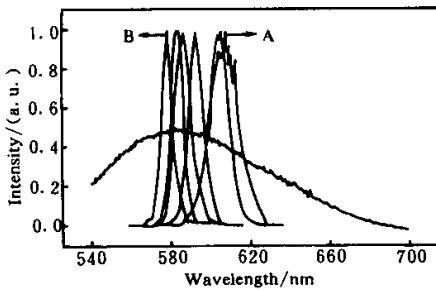


Fig. 5 ASE wavelength shift depending on the zero-order mode cut-off thickness. When the change of the pump position on the film leads to the increase of the thickness, the ASE moves to the short wavelength smoothly

设平面波导层的折射率为  $n_1$ , 基底的折射率为  $n_2$ , 覆盖层(空气)的折射率为  $n_3$ 。这是典型的非对称平面波导结构, 存在零阶模截止厚度<sup>[5]</sup>。实验中测量的是 TM 模, 波导层中 TM 模零阶导模的模式本征方程为<sup>[5]</sup>

$$\begin{aligned} & (n_1^2 - N^2)^{1/2} k_0 h = \\ & \arctan \left[ \left( \frac{n_1^2}{n_2^2} \right) \left( \frac{N^2 - n_2^2}{n_1^2 - N^2} \right)^{1/2} \right] + \\ & \arctan \left[ \left( \frac{n_1^2}{n_3^2} \right) \left( \frac{N^2 - n_3^2}{n_1^2 - N^2} \right)^{1/2} \right], \quad (1) \end{aligned}$$

其中,  $N$  为波导层的有效折射率,  $k_0 = 2\pi/\lambda_0$  ( $\lambda_0$  为真空波长) 为自由空间的波数,  $h$  为平面波导层的厚度。由于平面波导层折射率  $n_1$  与基底折射率  $n_2$  均与波长有关, 因此对波长  $\lambda$  存在零阶导模截止厚度  $h(\lambda)$ :

$$\begin{aligned} h(\lambda) = & \left[ (n_1^2 - n_2^2)^{1/2} k \right]^{-1} \times \\ & \arctan \left[ \left( \frac{n_1^2}{n_2^2} \right) \left( \frac{n_2^2 - 1}{n_1^2 - n_2^2} \right)^{1/2} \right], \quad (2) \end{aligned}$$

此时  $N = n_2$ ,  $n_3$  取为 1。图 6 所示即为样品折射率  $n_1$ 、基底折射率  $n_2$  以及零阶模截止厚度  $h$  随波长  $\lambda$  的变化关系。

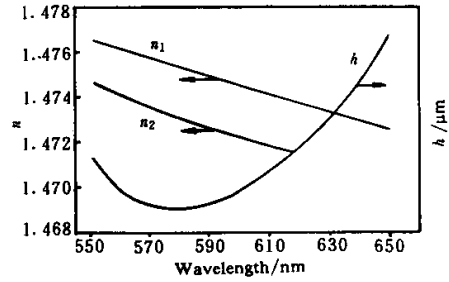


Fig. 6 The waveguide refractive index  $n_1$ , the substrate refractive index  $n_2$ , the zero-order mode cut-off thickness depending on the wavelength

由于  $n_1(\lambda)$  与  $n_2(\lambda)$  具有不同的色散关系, 导致了  $h(\lambda)$  随波长  $\lambda$  呈抛物线型变化。为获得样品折射率的色散曲线, 采用波导棱镜耦合法分别测量了样品在 532 nm、632 nm 和 1070 nm 波长处的折射率, 并用科西公式<sup>[9]</sup>

$$n(\lambda) = a + b/\lambda^2 + c/\lambda^4 \quad (3)$$

拟合得到色散曲线, 式中  $a$ 、 $b$ 、 $c$  为常数。由图 4 可以看出, DCM 的吸收光谱与荧光光谱有交叠, 即短波长的荧光会被重新吸收, 导致短波长处吸收损耗明显高于长波长, DCM 的放大自发辐射只能出现在波长大于 575 nm 的区域。在该区域  $h(\lambda)$  随波长减小而减小。因此, 当光波导厚度小于  $h(\lambda)$  时, 只有波长小于等于截止波长  $\lambda$  的光波在波导中存在一个导模, 可以在波导层中传播, 形成放大自发辐射, 且在 DCM 的荧光光谱波长范围内, 波长越长, 吸收越小。由以上两方面原因决定了只有波长等于截止波长  $\lambda$  的光波在光波导中吸收最小, 能够被放大, 形成放大自发辐射, 从而完成放大自发辐射的波长选择。光波导层的厚度大于 DCM 荧光光谱波长范围内所有波长的零阶模截止厚度时, 放大自发辐射的峰位只由吸收光谱和荧光光谱决定, 不会发生波长移动, 这就是通常观察到的放大自发辐射处于固定波长处的原因。

结论 对有机染料 DCM 掺杂的 PMMA 以及 DCM 掺杂的 PMMA/凝胶玻璃复合材料平面光波导中放大自发辐射进行了研究。通过改变波导层厚度, 在

一定范围内实现了对 DCM 掺杂的 PMMA/TEOS 复合材料的放大自发辐射波长进行选择,实现了调谐,波长选择范围达到 30 nm。如在波导放大自发辐射的出射端面粘贴高反膜片,即可实现波长可调谐激光输出。

### 参 考 文 献

- [ 1 ] Sorek Y, Reisfeld R, Finkelstein I *et al.*. Light amplification in a dye-doped glass planar waveguide. *Appl. Phys. Lett.*, 1995, **66**( 10 ):1169~1171
- [ 2 ] Deshpande A V, Namdas E B. Lasing action of rhodamine B in polyacrylic acid films. *Appl. Phys. ( B )*, 1997, **64**( 4 ):419~422
- [ 3 ] Ye C, Lam K S, Lam S K *et al.*. Dye-doped sol-gel derived silica laser tunable from 352 nm to 387 nm. *Appl. Phys. ( B )*, 1997, **65**( 1 ):109~111
- [ 4 ] Wegmann G, Giessen H, Greiner A *et al.*. Laser emission from a solid conjugated polymer: Gain, tunability, and coherence. *Phys. Rev. ( B )*, 1998, **57**( 8 ):4218~4221
- [ 5 ] 方俊鑫, 曹庄琪, 杨傅子. 光波导技术物理基础, 上海: 上海交通大学出版社, 1987. 1~15
- [ 6 ] Costela A, Garcia-Moreno I, Barroso J *et al.*. Studies on laser action from polymeric matrices doped with coumarin 503. *Appl. Phys. ( B )*, 1998, **67**( 2 ):167~173
- [ 7 ] Sorek Y, Reisfeld R, Finkelstein I *et al.*. Sol-gel glass waveguides prepared at low temperature. *Appl. Phys. Lett.*, 1993, **63**( 24 ):3256~3258
- [ 8 ] Andrews M P, Najafi S I. Passive and active sol-gel materials and devices. *Proc. SPIE*, 1997, **CR68**:253~303
- [ 9 ] 赵凯华, 钟锡华. 光学(下). 北京: 北京大学出版社, 1984. 234~235

## Realization of Wide Band Tunable Solid-State Dye Optical Amplification

Peng Xiang Xu Lei Hou Zhanjia Liu Liying Wang Wengcheng Li Fuming  
(*Lab of Laser Physics and Optics, The State Key Joint Lab for Materials Modification by Laser, Electron and Ion Beams, Department of Physics, Fudan University Shanghai 200433*)  
(Received 19 January 2000; revised 1 July 2000)

**Abstract:** Amplified spontaneous emission (ASE) in organic dye DCM doped PMMA and DCM doped PMMA/silica gel hybrid material planar waveguide are investigated. By controlling of the refractive index and the thickness of the waveguide, the ASE wavelength can be selected in a wide range and wavelength tuning is realized. The tuning range can reach 30 nm. The method can be applied to the wide band tuning of solid-state tunable lasers and optical amplifiers.

**Key words:** amplified spontaneous emission; planar waveguide; organic/inorganic hybrid materials