液晶软光子学——光场的多自由度调控*

陆延青†

(南京大学现代工程与应用科学学院 智能光传感与调控技术教育部重点实验室 南京 210023)

Liquid crystal soft mattonics—multi-degree manitipulation of light

LU Yan-Qing

(Key Laboratory of Intelligent Optical Sensing and Manipulation of the Ministry of Education, College of Engineering and Applied Sciences, Nanjing University, Nanjing 210023, China)

摘 要 液晶是一类典型的软物质。它具有优异的外场调谐特性以及多层级的组 装结构特征。文章介绍了作者在液晶光控取向技术及其光学应用方面取得的进展,如对 液晶进行图案化编码实现任意液晶微结构的制备及多层级操纵,对光场的振幅、相位、 偏振及波长等多自由度进行灵活、高效的调控,实现功能可调的液晶太赫兹器件等。

关键词 液晶,多层级结构,光取向,光场调控,太赫兹

Abstract Liquid crystal is a typical soft matter, with excellent external field tunability and hierarchical self-assembly. Here we present our recent work on the use of photo-alignment to manipulate the microstructure and even hierarchical structure of liquid crystals, resulting in various novel physical effects. Liquid crystal microstructures of arbitrary design have been fabricated by photo-patterning, which enables flexible and efficient control of the multi-dimensional parameters of light such as the amplitude, phase, polarization and wavelength. Liquid crystal based tunable terahertz devices have also been devised.

Keywords liquid crystal, hierarchical structure, photo-alignment, light manipulation, terahertz

1 引言

光子具有丰富的物理维度,包括频率/波长、 时间、振幅、偏振、自旋角动量、轨道角动量等。 与电子相比,光子具有极高的信息容量、强大的 并行处理能力。实现对光子在频域和空间域的并 行多维度调控对于集成化、智能化和小型化光学 系统的发展具有重要意义,在信息、生命、化学 和材料等领域具有广阔的应用前景。然而,精确、 高效地实现局域多维光场参量的调制与编解码仍 然是当前光子信息领域面临的难题。波长、振幅、 自旋、轨道角动量间的耦合也使得其按需独立调 控或联合调控受到制约。

液晶相是一种介于固体和液体之间的中间相, 其对应物常表述为液晶(liquid crystal, LC)。它兼 具液体的连续性、流动性和晶体的各向异性,展 现出典型的光学(Δn)、电学(Δε)各向异性以及灵敏 的多元外场(包括力、热、光、电、磁)响应特性。 除了传统的向列相液晶,液晶独特的分子结构和

2023-01-11收到

† email: yqlu@nju.edu.cn DOI: 10.7693/wl20230205

^{*} Soft mattonics 是 soft-matter photonics (软物质光子学)的简写,由作 者在 Chinese Optics Letters 期刊 2020 年第 8 期的专题导语 "Editorial for special issue on soft-matter photonics (soft mattonics)"中首次提出。

分子间相互作用赋予其灵活的自组装行为,能够 形成丰富多样的层级结构,如胆甾相液晶、近晶 相液晶、蓝相液晶等。探索液晶的纳米组装结构 与光学性质的双向映射,实现对光的多自由度的 动态正交调控,有望推动其在光计算、激光通讯、 集成光子芯片、虚拟现实等领域的创新与应用。 特别是,液晶多层级结构因其不同层级存在独特 的空间构型而具有对光多参量并行调制的能力。 液晶的外场刺激响应特性进一步增加其组装形式 的多样性。利用液晶多层级结构有望实现对光的 更多维度的、更复杂多变的操控,有望提升光信 息加载的能力,带来材料层面和技术层面的新效 应和新应用。

2012年,我们提出并实现了基于数字微镜系 统(digital micro-mirror device, DMD)对液晶进行 任意图案化取向的技术^[1]。通过对取向层进行动态 无掩膜曝光,诱导液晶指向矢的空间分布,从而 实现对光的点对点的波前控制。利用这项技术实 现了基于向列相液晶(nematic LC, NLC)的涡旋光 束、艾里光束、矢量光束等多种空间结构光场制 备^[2-5]。2015年,利用光取向技术操控胆甾相液晶 (cholesteric LC, CLC)螺旋轴平面内指向, 实现了 大规模、无缺陷的螺旋条纹和波浪状光栅等复杂 纹理⁶⁶。2018年,数字化手性超结构的概念被提出 并实现了宽带反射式几何相位的灵活操控。通过 编码达曼涡旋光栅,验证了涡旋光的生成、检测 与解复用^[7]。2019年,通过在胆甾相液晶中掺杂光 响应手性分子开关,实现了带宽超过1000 nm的主 动式平面光学器件¹⁸。此外,近年来,我们在四维 可视化成像、粒子输运以及结合超材料的液晶太 赫兹(THz)器件等方面也相继取得进展^[9-11]。文章 以我们在液晶光控取向技术及其光学应用方面取 得的新进展为主,结合国内外相关团队工作进行 展示。在广大同行的共同努力下,基于液晶的 "软光子学"研究新方向正处在迅猛发展中。

2 液晶多层级超结构操控

液晶是典型的软物质序构材料,兼具液体的流 动性与晶体的各向异性,且对多种外部刺激具有 灵敏的外场响应。液晶因其良好的受控自组装特性 及其独特的电光特性,受到了广泛的关注^[12-14]。如 能对自组装液晶多层级超结构进行有效的操控,不 仅能够获得功能液晶超结构材料、催生新奇物理效 应,同时也是研究光与物质相互作用的关键媒介。

2.1 向列相液晶图案化取向操控

向列相液晶是最简单、常见且应用最为广泛 的一类液晶材料,分子取向有序而位置无序。因 其粘度低,向列相液晶可以在极小的外部刺激作 用下发生弹性变形。在正交偏光显微镜下,退平 面取向的向列相液晶将呈现纹影织构,由弹性能 与其他贡献组成的系统总能量达到最小值决定。

取向是操控液晶微结构的有力手段。传统的 摩擦取向技术可以诱导液晶分子沿着特定的单一 方向排列,具有稳定性高、可靠性好及适合大面 积处理等优点,是显示产业流行的主要技术。但 该技术仍存在杂质污染、静电累积、不适用于曲 面基板、难以复杂取向等问题。为此,人们不断 探索操控液晶取向的新方法,以期获得理想的复 杂微结构操控。其中,光控取向技术因其灵活、 高效率、高品质、非接触、图案化等优势引起了 关注,且适用范围广[15-17]。其原理是利用光敏材 料在紫外线偏振光照射下发生分子取向重排,产 生各向异性表面,进而诱导液晶分子定向排列^[18]。 我们团队进一步研发了具有自主知识产权的动态 无掩膜曝光系统,基于光控取向技术成功制备了 包括光栅、透镜在内的一系列新型液晶元件及光 场调控器件[1,5,19]。

2.2 手性液晶相螺旋超结构操控

手性液晶相可以通过在液晶分子结构中引入 手性中心,或在向列相液晶中掺杂非外消旋的手 性材料形成,典型的如胆甾相(cholesteric phase)、 蓝相(blue phase)、扭曲晶界相(twist grain boundary phase)等。由手性中心产生分子间力诱导相 邻分子层的微小指向矢层内偏转,形成一维手性 螺旋结构。描述这种螺旋结构最重要的两个性质 是手性和螺距,其中手性描述了液晶分子沿着螺 旋轴的旋转方向,可分为左旋和右旋;而螺距 (pitch, *p*)则描绘了指向矢发生360°连续扭曲所对 应的轴向距离,*p*由手性剂的螺旋扭曲能(helical twisting power, HTP)与掺杂浓度*c*%共同决定。 凭借液晶分子的螺旋自组装,胆甾相液晶在边界 锚定或外场激励的协同调控下,能够产生大规 模有序的螺旋超结构,即不仅存在微观分子排列 的周期性,也具有介观结构的周期性,呈现多层 级组装的特征。

近年来,胆甾相液晶指纹织构在光束控制、 光谱扫描、光刻掩膜板、光学防伪、涡旋光产生、 粒子操控以及可调谐激光器等领域展现出了独特 的应用潜能,受到了极大的关注^[10, 13, 14]。然而, 通过传统摩擦取向等方法制备的指纹螺旋结构存 在缺陷多、不可靠等问题,且只能实现简单周期 性螺旋结构。对此,我们团队巧妙利用光取向技 术操控胆甾相液晶螺旋超结构,实现了对螺旋轴 面内指向的任意控制(图1)^[6]。李全教授团队进一 步发展了光对手性液晶螺旋轴指向的三维操纵, 并实现了光束衍射点阵和维度的任意光操控^[20]。 通过引入变化的温度场和电场,科学家们成功实



图1 (a)角向取向诱导构筑平面态螺旋超结构的液晶分子 排布示意图;(b)平面态螺旋超结构的织构图;(c)电场诱导 构筑阿基米德螺线型指纹超结构的液晶分子排布示意图; (d)阿基米德螺旋指纹超结构织构图^[6]。图中比例尺为50 μm

现了体系的有序度调控及指纹织构连续旋转。我 们团队基于手性分子开关掺杂的光敏胆甾相液晶 体系,系统地研究了螺旋超结构的光驱动光栅旋 转及周期变化规律,实现了对指纹织构周期和方 向的连续操控,总旋转角达987.8°^[21]。进一步利 用光控取向技术人为诱导分子组装构建精密螺旋 结构,利用光刺激增旋/解旋,模拟了细菌鞭毛螺 旋式自推进的运动模式,实现了可定制化操纵负 载微球的自驱动可编程执行器^[9]。

倾斜螺旋胆甾相液晶(heliconical CLC, HCLC) 是一种特殊的手性液晶序构材料,虽预测于半个 世纪前,直到近年由Lavrentovich团队和Clark团 队在弯曲形液晶二聚化合物中发现^[22,23]。相比于 传统的胆甾相液晶,倾斜螺旋结构在电场作用下 具有更宽域的反射带调谐功能。最近,我们与李 全教授团队、郑致刚教授团队合作,开发了稳定 可靠的光响应倾斜螺旋液晶体系,在电/光联合调 控下实现了不同螺旋超结构间的稳定、动态、可 逆操控,其布拉格反射光谱的动态调谐范围覆盖 了近紫外、可见光到近红外波段^[24]。通过进一步 加载空间几何相位,我们还提出相位与波长独立 控制的空间光场动态调控方案,有望应用于AR/ VR、全光网络、激光通信等领域^[25]。

蓝相存在于高手性胆甾相与各向同性相之间 的极窄温区,液晶分子围绕两个螺旋轴扭曲排列 形成柱状结构,并以立方堆积方式构筑产生三维 光子晶体。因其极窄频率的光子局域特性,及基 于克尔效应的快速电光响应能力,蓝相液晶在下 一代快速响应显示、可调激光、平面光学元件、 偏振全息技术等领域具有巨大的应用潜力。为攻 克蓝相液晶体系位错或旋错缺陷难以控制的问题, 团队另辟蹊径,采用光控取向技术实现了任意微 晶图案,直观证明了取向控制对晶格指向有序性 的决定性影响,并展示了基于微晶图案设计的有 前途的光子应用前景^[26]。

2.3 近晶相液晶拓扑超结构操控

相比于向列相和胆甾相,近晶相液晶有序度 更高,具有典型的分层结构特征,层内液晶分子 相互平行,垂直或倾斜于层面排列。当近晶相液 晶受到外部刺激,为保持液晶分子层间距恒定, 液晶分子层发生较大的展曲形变,形成具有特定 排列的液晶拓扑缺陷阵列。在几何上,存在三组 典型的缺陷线对:共轭的椭圆与双曲线、共轭的 两条抛物线、圆与经过圆心的直线。液晶分子层 包裹上述缺陷线对形成不同形态的拓扑缺陷。

焦锥畴是近晶相液晶中典型的拓扑缺陷结构, 其研究最为广泛。为获得可满足应用需求的拓扑 缺陷阵列,研究人员进行了诸多尝试,发明的操 控方法包括:(1)二维界面调控法,即通过不同界 面锚定影响畴结构的组装,如Ok等人通过双向摩 擦取向调控了焦锥畴阵列的对称性[27]; (2)三维几 何限制结构^[28],如在微通道或微柱阵列表面诱导 生长大小、排列受控的焦锥畴阵列。方法(2)由于 液晶与基板的相互作用有所增强, 使得对液晶分 子层的操控性得到了进一步提升,然而仍存在效 率低、操作复杂等问题。为获得更高维度、更高 精度操控,我们团队将"自上而下"的图案化取 向与"自下而上"的液晶分子组装结合,提出了 分子层"折纸术"概念,实现了对近晶相液晶焦 锥畴超结构全方位的操控。该类焦锥畴打破了环 面焦锥畴固有的旋转对称性,呈现出新颖的偏振 依赖不对称衍射现象^[29]。进一步通过对焦锥畴单元 大小和朝向的设计,利用焦锥畴微透镜成像功能, 实现了对待测物体深度与偏振信息的高效提取, 并报道了一种四维可视化成像新技术(图2)^{10]}。此 外,我们借助光取向锚定奇点阵列设计,还提出 了利用液晶拓扑缺陷协同组装液晶分层超结构的 新策略,并在较薄液晶膜层中实现了高质量油纹 线型畴的灵活操控。通过可编程取向图案的诱导, 验证了油纹线型畴的弯折、弯曲、展曲控制,并 探究了与弯折角度及弯曲、展曲曲率相关的结构 操控规律^[30]。为攻克近晶相液晶动态可调的问题, 我们通过聚合物稳定策略以及外场激励,实现 了焦锥畴微透镜阵列的动态重构,获得了焦距在 40—850 µm 范围内的可调谐^[31]。通过引入光敏手 性分子开关,利用表面电致倾斜效应,成功操控 了液晶体系的手性强度与分子间极化耦合,实现 了光制动油纹线型畴的连续可逆旋转^[32]。上述工



图2 (a)基于受控近晶相液晶焦锥畴阵列的四维可视化成像 示意图; (b)目标探测物偏振信息解复用功能示意图(左)及实 验结果(右); (c)目标探测物空间深度信息解复用功能示意图 (左)及实验结果(右)^[10]。图中比例尺为20 μm

作的研究将大大推动近晶相液晶拓扑缺陷超结构 的实用化进程。

3 基于液晶微结构的光场调控技术

借助微纳加工技术,我们能够精准控制液晶 分子倾角/方位角的空间分布,从而灵活操控光场 的振幅、相位、偏振等维度。下文将围绕向列相 与胆甾相液晶,具体介绍基于液晶微结构的光场 调控技术。

3.1 向列相液晶

目前,商用光学器件中使用的液晶大多是棒 状的向列相液晶,其指向矢方向可由倾角θ和方 位角α共同描述。当光束垂直入射到液晶层,向 列相液晶的寻常光折射率始终为n_o,有效非寻常 光折射率n_{eff}的大小与倾角θ相关,取值范围为n。 一n_e(n_e为液晶的非寻常光折射率)。由于折射率的 差异,o光与e光经过相同的液晶层后,通常会获 得不同的附加相位,其中e光相位与液晶倾角θ相 关。这种由光程引入,与传输介质折射率、厚度 紧密相关的相位,称为"动力学相位"。通过改变 外加电压,可以控制倾角θ在0°与90°之间连续变 化,进而调控e光相位。而通过设计方位角α的正 交分布,使一部分区域对入射光的折射率为n_o,



图3 基于向列相液晶的光场调控技术 (a)带有环形电极的 液晶可调透镜(a-i),可通过调节电压来改变透镜的焦距((a-ii) 和(a-iii))^[33], (b)角向渐变取向的液晶q波片(b-i),可产生 "甜甜圈"形状的涡旋光或矢量光(b-ii),其中矢量光在检偏 后会变成瓣状光斑(b-iii)^[38]

另一部分为n_{eff},可实现二值相位的空间调制。

基于上述动力学相位原理,图案化/像素化的 电极对不同区域的 n_{eff}影响程度不同,能使入射 e 光获得随空间变化的相位分布。例如,Lin等人利 用环形电极,实现了焦距可电调的液晶透镜^[33](图 3(a))。基于像素电极的液晶空间光调制器可实时、 精准地调控空间相位,目前已得到广泛应用。正 交取向液晶无需加工特殊电极,就能引入图案化 的二值相位分布。例如,Chen等人制成正交取向 的液晶达曼涡旋光栅,实现了涡旋光阵列的产生 与调控^[34]。

近年来,液晶的几何相位成为新的研究热点。 与动力学相位不同,几何相位源于光的自旋轨道 耦合,通常只依赖于传输介质光轴分布的几何特 征^[35]。假设向列相液晶层的方位角分布为*a*(*x*, *y*), 并满足半波条件。左旋、右旋圆偏振光经过液晶 层后,将分别获得几何相位+2*a*(*x*, *y*)与-2*a*(*x*, *y*), 其大小是液晶取向角的两倍,符号与入射光圆偏 振旋性相关。因此,只要合理设计液晶取向图案, 理论上就能实现任意的空间相位调制。

偏振光栅、几何相位透镜与q波片是三种最 典型的液晶几何相位元件。其中,液晶偏振光栅 利用线性渐变的取向角,来为正交圆偏振光引入 相反的线性梯度相位,使它们朝不同方向偏转^[36]。 几何相位透镜的取向角满足径向抛物线关系,可 对一种旋性的圆偏振光起会聚作用,对另一种起 发散作用^[37]。q波片中的液晶取向呈螺旋形(角向 渐变),能够检测或产生携带螺旋相位的涡旋光以 及具有螺旋偏振结构的矢量光^[38](图3(b))。此外, 结合线形、抛物线形、螺旋形微结构,还可以制 成偏振叉形光栅、涡旋透镜等新颖几何相位元 件。2017年,Chen等人提出数字化几何相位概 念,即用二值结构对连续几何相位编码,以实现 更丰富的功能^[2]。我们用达曼光栅、圆形达曼光 栅、达曼涡旋光栅编码螺旋几何相位,分别实现 了高阶、完美、混合阶庞加莱球光束的动态阵列 化调控。Liu等人用交叠达曼结构编码涡旋透镜 相位,还实现了涡旋光、矢量光三维阵列的灵活 操控^[39]。

3.2 胆甾相液晶

手性液晶的分子呈自组装螺旋排列,典型相 态有胆甾相、蓝相、铁电液晶。以胆甾相液晶为 例,其分子沿螺旋轴方向自组装形成螺旋结构, 当螺旋轴垂直于液晶盒表面时,会表现出手性光子 带隙,即圆偏振选择性的布拉格反射。当入射光 的圆偏振旋性和胆甾相液晶手性一致时,处于布 拉格反射带内的入射光将被反射,其余透射;而 当入射光圆偏振旋性相反时,入射光将全部透射。

2016年,科学家们首次在胆甾相液晶的布拉 格反射带隙中发现了几何相位^[40-42],很快引起关 注,成为软光子学的前沿。胆甾相液晶的反射式 几何相位起源于光子自旋轨道耦合。当入射光波 长满足布拉格反射条件,λ值位于n_op — n_op (p表 示螺距,n_o、n_o分别表示寻常光、非寻常光折射 率)之间时,反射光偏振态与入射光保持一致,这 和镜面反射不同,意味着入射光改变了其传播方 向但保留了偏振态,所以自旋角动量发生反转, 自旋角动量耦合轨道角动量,也就带来了几何相 位。几何相位的大小与光程无关,是入射面上胆 甾相液晶分子取向角的两倍,因此,通过控制液 晶表层取向角,就可以得到0 — 2π任意大小的几 何相位。得益于自组装螺旋结构,人们只需要设 计表层液晶分子取向角的分布,便可以产生需要 的宽波段光场。通过光控取向技术可以精准实现 点对点液晶分子的锚定,该技术为胆甾相液晶几 何相位器件的发展奠定了良好基础。

基于上述原理, Kobashi 等人提出了一种反射 式光束偏折器[41]。这种器件具有周期性渐变的液 晶取向图案,可实现具有圆偏振选择性的光束偏 折^[8](图4)。此外,沿角向渐变的伴随有中心相位 奇点的螺旋结构也引起了科学家的关注,可以得 到中空的"甜甜圈"状光斑。Chen等人提出了一 种新型数字化编码手性结构,实现了涡旋光束的 多路并行解复用,有望为宽波段、大容量的通信 技术提供新思路¹⁷。另一方面,胆甾相液晶的单 手性决定了单一圆偏振依赖的几何相位调制, Zhu等人针对这一局限, 巧妙设计出双手性共存 的液晶超结构,同时对两种圆偏振实现了宽波段、 反射式几何相位调制,促进手性软物质光子学的 发展与应用^[43]。Yuan 等人通过将胆甾相液晶薄膜 和镜像对称双扭曲结构的液晶聚合物集成,分别 赋予旋性相反的反射光与透射光以不同的相位调 制,实现了自旋解耦的透反射空间光调制^[44]。

功能固定而单一的器件,难以灵活满足不同 的使用条件和功能需求。因此,人们致力干研制 动态的光子学元件。胆甾相液晶具备优良的动态 调控特性,其螺旋结构的重要参量——螺距,对 力、热、电、磁、光、湿度等外部刺激均有响应, 借助特殊功能分子,螺旋手性的可控翻转也可 实现。胆甾相液晶为动态光学元件的发展注入 了蓬勃活力。胆甾相液晶的热调控具有丰富多样 的机理和形式,例如热膨胀、相变、相转移等。 Zhang等人利用热响应手性液晶超结构,设计了 一种动态选择的光子角动量检测器[45]。电调控在 响应时间上有显著优势。在低频(kHz量级)电场 下,由于介电各向异性,液晶分子相应旋转重整, 然而,高于临界值的电场将导致螺旋结构塌缩。 为了扩大调谐范围,Xu等人利用聚合-洗出-重 填工艺,构筑手性液晶聚合物框架,开发了一种 工作波段可调的光子轨道角动量并行处理器⁴⁰。 进一步地,他们利用电致倾斜螺旋原理[24],实现

了相位与波长独立控制的光场调制^[25]。光调控是 一种非接触、高分辨率的手段,其发展得益于光 控功能分子和自组装超结构的结合。Chen等人引 入偶氮类光敏手性分子,构筑光控手性可翻转的 螺旋超结构,获得了一系列动态平面光学元件, 工作波段双向连续调谐,而手性翻转带来元件功 能的共轭变换^[8]。在此基础上,他们进一步实现 了多维度联合编码的动态复用全息技术^[47]。

4 基于液晶的太赫兹器件研究进展

太赫兹(terahertz, THz)波泛指频率在 0.1 — 10 THz (1 THz = 10¹² Hz)范围内的电磁波,位于微 波和红外线之间,具有光子能量低、穿透性高、 通信容量大和独特的指纹谱等特性。处于电子学 与光子学之间的 THz 科技,在无损检测、生物医 学、高速无线通信等领域应用前景广阔。相对于 THz 源和 THz 探测器的快速发展,THz 功能器件 的发展还不够成熟,对器件动态可重构的需求尤 为迫切。液晶作为优异的可调控光电功能材料, 其介电和光学各向异性覆盖从紫外到微波频段。 液晶器件具有无机械移动部件、体积小、重量轻、 连续可调等优势,尤其在显示领域积累了大量的 技术基础,使得其在 THz 领域极具应用潜力。近



图4 利用左旋胆甾相液晶构筑的螺旋柱空间渐变的光栅结 构示意图(a)、样品显微照片(b)和光束偏折照片(c)^[8]。入射线 偏振光,在胆甾相液晶的布拉格反射带内,只有左旋圆偏振 光被反射,并携带该结构所赋予的渐变倾斜平面波相位,因 此会带来左旋圆偏振的反射式光束偏折效果,而与胆甾相液 晶旋性相反的右旋圆偏振光则直接透过,不发生光束偏折, 即实现了圆偏振选择性的半透半反调制



图5 (a)宽带低电压连续可调的 THz 波片: 亚波长金属线栅 偏振片为入射面电极, 少层多孔石墨烯为出射面电极, 光控 取向 THz 波段大双折射液晶材料, 其中 SD1 是偶氮苯磺酸盐 染料^[50]; (b)基于光取向液晶聚合物的平面 THz 光子元件, 可实现波束聚焦、偏转、赋形和轨道角动量模式复用等功能 (左), 右上图为液晶聚合物的网络结构及有序取向, 右下图 为液晶聚合物柔性光子器件的可弯曲性展示^[55]

年来基于液晶的可调THz器件研究备受关注。

4.1 传统LC THz器件

常规液晶在 THz 波段的折射率比较小,如液 晶材料 5CB,在 0.3—1.4 THz 范围双折射 Δn 为 0.13—0.21;液晶材料 K15 和 E7 在 0.1—0.35 THz 内 Δn 分别约等于 0.05 和 0.08。要想获得足够大的 相位延迟,THz 波段的液晶层厚度需要和工作波 长相近,这样液晶层太厚,会导致 LC THz 器件响 应速度慢和工作电压高等问题。因此,寻找 THz 波段大双折射液晶材料是需要首先解决的问题。 2012年,我们与清华大学梁晓教授研究组合作, 设计制备了一种 THz 波段大双折射液晶材料,具 体以氟化二苯乙炔衍生物为主要成分,是最早报 道的在 THz 波段 $\Delta n > 0.3$,且温宽达到实用要求 的混合液晶材料^[48]。随后,Reuter等人报道了两 种液晶混合物 1852 和 1825,在 0.2—2.5 THz, Δn 最大分别为 0.32 和 0.38,但其吸收系数随 THz 频率 变化明显[49]。

在所有驱动液晶的机制中, 电调LC THz器件 由于其易集成和高可靠性,最具吸引力,但在可 见光波段工作的透明电极 ITO, 在 THz 波段不再 透明。2015年, 少层多孔石墨烯被用于THz波段 透明电极,其在0.5-2.5 THz透过率高达98%以 上, 且面电阻较小, 无偏振依赖特性, 这样就解 决了长期以来阻碍LC THz 器件发展的两个基本问 题。我们结合亚波长金属线栅偏振电极,驱动被 光控取向的上述 THz 波段大双折射液晶材料,设 计了一种宽带低电压连续可调的 THz 波片,如图 5(a)所示,通过构造双层液晶盒的方案,工作带 宽进一步增大,工作电压进一步减小,实现了真 正高效实用的超宽带可调波片^[50]。随后, Sasaki 等人也用石墨烯电极驱动随机取向的液晶,实现 了任意偏振态 THz 波的相位延迟^[51]。以上LC THz 器件是透射式的。2017年,一种基于亚波长金属 线栅的反射式电控宽带可调LC THz波片被设计实 现^[52]。对于给定的相位差,反射式波片所需液晶 层厚度约为透射式的1/10;同样液晶层厚度下, 相位差动态可调范围约是透射式的2倍。

随着光控取向技术的不断发展,基于DMD 系统,2017年成功制备了LC THz q波片,实现了 不同拓扑荷的 THz 涡旋波,这是国际上首次报道 的利用LC产生和调制THz涡旋^[53]。在此基础上, 我们又研发了一种LC THz 叉形偏振光栅,为THz 涡旋的产生和分离提供了一种简单实用的方法。 进一步,在THz波段引入几何相位的概念,设计 棋盘型空间复用的透镜相位模板,利用光控取向 液晶技术制备了THz平面透镜,对于入射的左右 旋圆偏振THz光实现了宽波段内自旋选择性聚焦, 上下基板上的石墨烯透明电极驱动液晶,验证了 聚焦的电控可开关特性[54]。针对液晶器件基板带 来的反射损耗大等问题,我们提出了一种全新的 基于光控取向液晶聚合物的平面THz光子元件设 计方案。首先将几何相位信息写入液晶取向中, 再通过紫外光聚合就能得到特定功能的 THz 波前 调制元件,具有柔性自支撑、机械形变可调、稳 定性良好等优势。我们设计了多种THz光子元件, 如波片、光束偏折器、透镜、贝塞尔以及涡旋光 产生器,如图 5(b)所示,完成了一系列适用于 THz无线通信的基本功能验证,包括:偏振控制、 波束偏转、波束赋形和轨道角动量模式复用等^[55]。

4.2 结合超材料的LC THz器件

超材料具有亚波长人工微结构,理论上可以 任意设计电磁参数(介电常数 ε ,磁导率 μ),是操 控电磁波的理想平台,尤其在 THz 波段,自然界 尚无特别高效的材料来操控THz波。金属超材料 既可设计成各种功能器件又可作为电极驱动液晶, 同时超材料的亚波长局域场增强特性,可使液晶 层厚度大大减小,基于液晶的 THz 可调超材料器 件响应速度会显著提高,驱动电压会明显降低。 2013年, Padilla等人首次设计实现了一种基于液 晶的可调 THz 超材料吸收器, 但该器件谐振频率 可调范围只有4%,在2.62 THz振幅可调范围只 有30%^[56]。我们创造性地把少层多孔石墨烯THz 透明电极铺在金属超材料表面上,设计了一种不 同臂长的十字架型 THz 超材料吸收器,实现了 高性能的宽带可调题。谐振频率范围为0.75 — 1 THz, 且具有较高的品质因子, 振幅可调范围在 80% 左右,最大工作电压只需10 V。基于这种超 材料/石墨烯复合电极概念,一种透射式对线偏振 方向敏感的法诺共振型超表面器件,结合电控液 晶偏振旋转器,实现了660 GHz的宽波段内超过 50%的大调制深度^[58]。利用亚波长线栅作叉指

电极,基于液晶的可调THz超材 料多功能器件被设计实现^[59]。在 透射模式下可实现类电磁诱导透 明效应的谐振滤波功能,频率调谐 范围 60 GHz,在1.27 THz可获得 37%的调制深度;在反射模式下可 实现动态吸波功能,频率调谐范围 50 GHz,在1.08 THz可获得81%的 调制深度。液晶层厚度仅为5 μm, 可实现2.4 ms的快速响应。

针对THz金属超材料器件损耗 较大的问题,可以设计集成石墨烯 透明电极的可调液晶介质超材料 THz 器件。我们提出了一种具有宽带色散可调控 功能的 THz 超透镜,如图 6(a)所示,集成了光控 取向液晶畴的几何相位和介质超表面的谐振相位。 不加电时,可实现 0.9 — 1.4 THz 频段范围内焦距 为 15.0 mm 的宽带消色差聚焦效果,当在石墨烯 电极上对液晶层施加饱和电压时,液晶的几何相 位调制消失,透镜呈现色散聚焦特性,透镜焦距 随频率增大显著减小^[11],还可设计实现色散可调 的 THz 波束偏折器。通过像素化电控液晶单元, 可形成对超材料特定区域的局部调控,实现 THz 空间波前调制的效果,在成像等领域具有应用潜 力。如图 6(b)所示,Li等人设计了一种基于液晶 的 THz 超材料空间光调制器,实现了双色 THz 压 缩感知成像,为低成本、实用化的 THz 单像素多 光谱成像技术开辟了一条新途径^[60]。

5 结束语

从简单结构到多层级超结构,从简单光场到 复杂结构光场,从静态功能到动态功能,从单一 波长到宽带高效,液晶光学正朝着多样化、多功 能、多维度调控的方向发展。这不仅是基础研究 的前沿,也具有广阔的应用前景。首先,由于多 层级组装过程的多样性和复杂性,在微观层面会 衍生出丰富多样的结构类型。多层级结构及其跨 尺度传递特性有望给软物质凝聚态物理学提供新



图6 (a)宽带色散可调 THz介质超透镜,不加电时,可实现宽带消色差聚焦(左), 当在石墨烯电极上施加饱和电压时,透镜呈现色散聚焦特性(右)^[11];(b)基于液晶 超材料空间光调制器的双色 THz 压缩感知成像,当施加电压偏置后,工作谐振 频点发生了约 20 GHz 的频率偏移,两个谐振频点(*f*₁和*f*₂)的反射和吸收状态恰好 相反,调制深度均大于 70%^[60]

颖的研究课题。其次,由于液晶中特征结构的尺 度和光波长可以比拟,通过功能单元及其空间序 构的设计,催生了多维光子的并行调控,可实现 光子偏振、方向、角动量、波长等的多维度正交、 高效调制。我们相信,液晶"软光子"学必将在

参考文献

- [1] Wu H, Hu W, Hu H C et al. Opt. Express, 2012, 20:16684
- [2] Chen P, Ge S J, Duan W et al. ACS Photonics, 2017, 4:1333
- [3] Chen P, Wei B Y, Ji W et al. Photonics Res., 2015, 3:133
- [4] Wei B Y, Chen P, Hu W et al. Sci. Rep., 2015, 5:17484
- [5] Wei B Y, Hu W, Ming Y et al. Adv. Mater., 2014, 26:1590
- [6] Ma L L, Li S S, Li W S *et al*. Adv. Opt. Mater. ,2015, 3:1691
- [7] Chen P, Ma L L, Duan W et al. Adv. Mater., 2018, 30: 1705865
- [8] Chen P, Ma L L, Hu W et al. Nat. Commun., 2019, 10:2518
- [9] Ma L L , Liu C , Wu S B et al. Sci. Adv. , 2021 , 7 ; eabh3505
- [10] Ma L L , Wu S B , Hu W $et\,al.\, {\rm ACS}\, {\rm Nano}\, , 2019\, , 13\, ; 13709$
- [11] Shen Z X, Zhou S H, Li X A et al. Adv. Photonics, 2020, 2: 036002
- [12] Ma L L, Hu W, Zheng Z G et al. Adv. Opt. Mater., 2019, 7: 1900393
- [13] Ma L L, Li C Y, Pan J T et al. Light Sci. Appl., 2022, 11:270
- [14] 曹慧敏,吴赛博,王靖阁等.液晶与显示,2021,36:921
- [15] Ge S J, Ji W, Cui G X et al. Opt. Mater. Express, 2014, 4:2535
- [16] Lin X W, Hu W, Hu X K et al. Opt. Lett., 2012, 37:3627
- [17] Srivastava A K, Hu W, Chigrinov V G et al. Appl. Phys. Lett., 2012, 101:031112
- [18] Akiyama H, Kawara T, Takada H et al. Liq. Cryst., 2002, 29: 1321
- [19] Hu W, Srivastava A, Xu F et al. Opt. Express, 2012, 20: 5384
- [20] Zheng Z G, Li Y N, Bisoyi H K et al. Nature, 2016, 531:352
- [21] Ma L L, Duan W, Tang M J et al. Polymers, 2017, 9:295
- [22] Borshch V, Kim Y K, Xiang J et al. Nat. Commun., 2013, 4: 2635
- [23] Chen D, Porada J H, Hooper J B *et al.* Proc. Natl. Acad. Sci. USA, 2013, 110:15931
- [24] Yuan C L, Huang W B, Zheng Z G et al. Sci. Adv., 2019, 5: eaax9501
- [25] Xu C T, Liu B H, Peng C et al. Adv. Opt. Mater., 2022, 10: 2201088
- [26] Zhou K, Bisoyi H K, Jin J Q et al. Adv. Mater., 2018, 30: 1800237
- [27] Ok J M, Kim Y H, Jeong H S et al. Soft Matter, 2013, 9:10135
- [28] Honglawan A, Beller D A, Cavallaro M et al. Adv. Mater., 2011, 23:5519
- [29] Ma L L, Tang M J, Hu W et al. Adv. Mater., 2017, 29:1606671
- [30] Wu S B, Ma L L, Chen P et al. Adv. Opt. Mater., 2020, 8: 2000593
- [31] Wu J B, Wu S B, Cao H M et al. Adv. Opt. Mater., 2022, 10:

新型显示成像、柔性光电器件、光场时空调控、 量子信息技术等领域发挥越来越大的作用。

致 谢 感谢胡伟、陈鹏、马玲玲、王磊、徐 春庭等人在文章撰写过程中提供的帮助。

2201015

- [32] Wu S B, Cao H M, Wu J B et al. Adv. Opt. Mater., 2022, 10: 2102754
- [33] Lin H C, Lin Y H. Appl. Phys. Lett., 2011, 98:083503
- [34] Chen P, Ge S J, Ma L L et al. Phys. Rev. Appl., 2016, 5:044009
- [35] Chen P, Wei B Y, Hu W et al. Adv. Mater., 2020, 32: 1903665
- [36] 袁方,谭庆贵,王光耀等.液晶与显示,2022,37:1411
- [37] Kim J, Li Y, Miskiewicz M N et al. Optica, 2015, 2:958
- [38] Slussarenko S, Murauski A, Du T et al. Opt. Express, 2011, 19: 4085
- [39] Liu S J, Chen P, Ge S J et al. Laser Photonics Rev., 2022, 16: 2200118
- [40] Barboza R, Bortolozzo U, Clerc M G et al. Phys. Rev. Lett., 2016,117:053903
- [41] Kobashi J, Yoshida H, Ozaki M. Nat. Photonics, 2016, 10:389
- [42] Rafayelyan M, Tkachenko G, Brasselet E. Phys. Rev. Lett., 2016,116:253902
- [43] Zhu L, Xu C T, Chen P et al. Light Sci. Appl., 2022, 11:135
- [44] Yuan R, Xu C T, Cao H et al. Adv. Sci., 2022, 9:2202424
- [45] Zhang Y H, Chen P, Xu C T et al. ACS Photonics, 2022, 9:1050
- [46] Xu C T, Chen P, Zhang Y H et al. Appl. Phys. Lett., 2021, 118: 151102
- [47] Chen P, Shen Z X, Xu C T et al. Laser Photonics Rev., 2022, 16: 2200011
- [48] Wang L, Lin X W, Liang X et al. Opt. Mater. Express, 2012, 2: 1314
- [49] Reuter M, Vieweg N, Fischer B et al. APL Mater., 2013, 1: 012107
- [50] Wang L, Lin X W, Hu W et al. Light Sci. Appl., 2015, 4:e253
- [51] Sasaki T, Noda K, Kawatsuki N et al. Opt. Lett., 2015, 40:1544
- [52] Wang L, Ge S J, Hu W et al. Opt. Mater. Express, 2017, 7:2023
- [53] Ge S J, Chen P, Shen Z X et al. Opt. Express, 2017, 25:12349
- [54] Shen Z X, Zhou S H, Ge S J et al. Opt. Express, 2019, 27:8800
- [55] Shen Z X, Tang M J, Chen P et al. Adv. Opt. Mater., 2020, 8: 1902124
- [56] Shrekenhamer D, Chen W C, Padilla W J. Phys. Rev. Lett., 2013,110:177403
- [57] Wang L, Ge S J, Hu W et al. Opt. Express, 2017, 25:23873
- [58] Shen Z X, Zhou S H, Ge S J et al. Appl. Phys. Lett., 2019, 114: 041106
- [59] Shen Z X, Zhou S H, Ge S J et al. Opt. Lett., 2018, 43: 4695
- [60] Li W L, Hu X M, Wu J B et al. Light Sci. Appl., 2022, 11:191