倾斜长周期光纤光栅薄膜传感器特性研究

陈海云[1,2,3],顾铮先[2],陈 鑫[2]

(1. 上海理工大学 光电信息与计算机工程学院,上海 200093;
2. 上海理工大学 理学院 光电功能薄膜实验室,上海 200093;
3. 浙江师范大学 信息光学研究所,浙江 金华 321004)

摘 要:为设计高灵敏光纤光栅薄膜传感器,基于耦合模理论研究了表面镀制高折射率敏感薄膜的倾斜长周期光纤光栅(TLPFG)耦合特性和薄膜折射率传感特性。TLPFG 能激发高阶(角向序数 l>1)包层模耦合,高阶包层模耦合系数随倾角 θ 增大而增大,θ<80°时,高阶包层模耦合系数远小于 1 阶包层模耦合系数。研究表明,光栅倾角变化不影响包层模耦合谐振波长,但影响光谱透过率。进一步研究了 TLPFG 在 θ<80°时 1 阶 5 次包层模耦合的光谱透过率对薄膜折射率变化的响应,分析了光栅结构参数(**L**、Λ、θ)和薄膜参数($\mathbf{h}_3$,$\mathbf{n}_3$)对薄膜折射率响应灵敏度的影响,结果表明,响应灵敏度相比于非倾斜 LPFG 可提高一个数量级,对薄膜折射率的分辨率可达 10^{-9}。

关键词:光纤光学; 倾斜长周期光纤光栅; 耦合系数; 灵敏度; 分辨率
中图分类号:TN253 **文献标志码**:A **文章编号**:1007-2276(2013)11-3116-06

Characteristics of film sensor based on tilted long-period fiber gratings

Chen Haiyun[1,2,3], Gu Zhengtian[2], Chen Xin[2]

(1. School of Optical-Electric and Computer Engineering, University of Shanghai for Science and Technology, Shanghai 200093, China; 2. Laboratory of Opto-electric Functional Films, College of Science, University of Shanghai for Science and Technology, Shanghai 200093, China; 3. Institute of Information Optics, Zhejiang Normal University, Jinhua 321004, China)

Abstract: In order to design a high-sensitive fiber-grating-based film sensor, the coupling features and sensing characteristics to the film refractive index of tilted long-period fiber gratings (TLPFG) coated with high-refractive-index sensitive films were studied, based on the coupled-mode theory. TLPFGs can couple the core mode to higher-order (azimuthal number l>1) cladding modes whose coupling coefficients increased with the tilt angle θ and were much less than that of the first-order cladding mode for θ<80°. It is confirmed that the tilt angle plays a role in determining the spectral transmittance rather than the resonant wavelength of the cladding-mode coupling. The response of spectral transmittance related to the 1-order and 5-number cladding mode of TLPFG to the variation of film refractive index were investigated

收稿日期:2013-03-09; **修订日期**:2013-04-13
基金项目:国家自然科学基金(60777035);教育部科学技术研究重点项目(208040);上海市教育委员会科研创新重点项目(11ZZ131);上海市重点学科建设项目(S30502)
作者简介:陈海云(1977-),男,讲师,博士生,主要从事光纤光栅传感理论与技术、光电检测等方面的研究。Email:beloner@163.com
导师简介:顾铮先(1965-),男,教授,博士生导师,主要从事光电工程与测量、光电功能薄膜、光纤传感器等方面的研究。Email:zhengtiangu@163.com

under $\theta<80°$. The dependence of sensitivity of coated TLPFGs on the grating structural parameters($\mathbf{L}$, Λ, θ) and film optical parameters ($\mathbf{h}_3$, $\mathbf{n}_3$) were analyzed. Result shows the sensitivity is greater than that of the non-tilted LPFGs by one order and the resolution of film refractive index is available to be 10^{-9}.

Key words: fiber optics; tilted long-period fiber grating(TLPFG); coupling coefficient; sensitivity; resolution

0 引 言

长周期光纤光栅(LPFG)由光纤纤芯折射率沿轴向受到周期性调制而形成，光栅周期通常在几十微米到几百微米范围，可使满足相位匹配条件的光从纤芯模耦合到同向传输的包层模，从而在透射谱中产生一系列离散的损耗峰。与 Bragg 光纤光栅相比，长周期光纤光栅制作容易、插入损耗低、后向反射小、结构紧凑，已经广泛应用于通信[1]和传感[2]领域。N. D. Rees 等最先设计了镀膜长周期光纤光栅结构[3]，此后，镀膜 LPFG 的研究越来越受到关注[4-5]。在LPFG 表面镀制一层折射率大于包层材料的薄膜可以改变包层模模场分布，从而影响 LPFG 的光谱特性。而有些薄膜材料对于特定的环境参量如气体浓度、湿度和 pH 等敏感，薄膜与环境相互作用可引起薄膜折射率的微小变化，从而导致谐振波长和透过率变化，已被广泛用于光化学传感[6]。

普通光纤光栅的栅面与光纤法向平行，即栅面与光纤轴向垂直，而倾斜光纤光栅的栅面与光纤法向成 θ 角度，$\theta<45°$称为反射型倾斜光纤光栅，也称为倾斜布拉格光纤光栅(TFBG)，前向纤芯模被耦合到反向纤芯模和包层模；$\theta>45°$称为透射型倾斜光纤光栅，也称为倾斜长周期光纤光栅，前向纤芯模被耦合到同向传输的包层模。目前倾斜光纤光栅的研究主要集中于 TFBG[7-8]。光栅倾角的引入大大增强了 FBG 中的包层模耦合强度，这使得 TFGB 除了可用于一般的温度和应力测量外，还可应用于折射率传感[9]。LPFG 中发生的是纤芯模到同向包层模的耦合，包层模的有效折射率易受环境折射率影响，因而 LPFG 的光谱对折射率变化有很高的响应。而在倾斜长周期光纤光栅(TLPFG)中，倾斜折射率调制不仅可以激发纤芯模向高阶(l>1)包层模耦合，还可以提高纤芯模与 1 阶包层模的耦合系数[10]，因而 TLPFG 的光谱对折射率变化有更高的响应灵敏度。

文中基于耦合模理论，研究表面镀制高折射率敏感薄膜倾斜 TLPFG 的耦合特性，分析不同阶次包层模耦合系数及其与倾角的变化关系，数值模拟 1阶和 2 阶包层模耦合相应的光栅透射谱，重点研究 $\theta<80°$时 1 阶 5 次包层模透射谱对薄膜折射率变化的响应灵敏度，分析光栅结构参数(长度 $\mathbf{L}$、周期 Λ、倾角 θ)和薄膜参数(折射率 $\mathbf{n}_3$、厚度 $\mathbf{h}_3$)对灵敏度的影响，通过优化计算得到 TLPFG 薄膜传感器高灵敏度对应的参数组合，以期为倾斜长周期光纤光栅薄膜传感器设计提供理论基础。

1 理论分析

1.1 TLPFG 结构

镀膜 TLPFG 结构如图 1(a)所示，图 1(b)为相应的折射率分布示意图，$\mathbf{a}_1$ 和 $\mathbf{a}_2$ 分别为纤芯与包层半径，$\mathbf{h}_3=\mathbf{a}_3-\mathbf{a}_2$ 为薄膜厚度，$\mathbf{n}_1$、$\mathbf{n}_2$、$\mathbf{n}_3$ 和 $\mathbf{n}_4$ 分别表示纤芯、包层、薄膜和环境折射率，且满足 $\mathbf{n}_3>\mathbf{n}_1>\mathbf{n}_2>\mathbf{n}_4$。文中模拟计算中采用的结构参数如下：$\mathbf{n}_1=1.4681$、$\mathbf{n}_2=1.4628$、$\mathbf{n}_3=1.75$、$\mathbf{n}_4=1$、$\mathbf{a}_1=4.15$ m、$\mathbf{a}_2=62.5$ m、$\mathbf{h}_3=200$ nm。如图1(a)所示，光栅栅面与光纤法向夹角为 θ，光栅沿光纤轴向的周期为 Λ，由图可知 $\Lambda_g=\Lambda\cos\theta$。

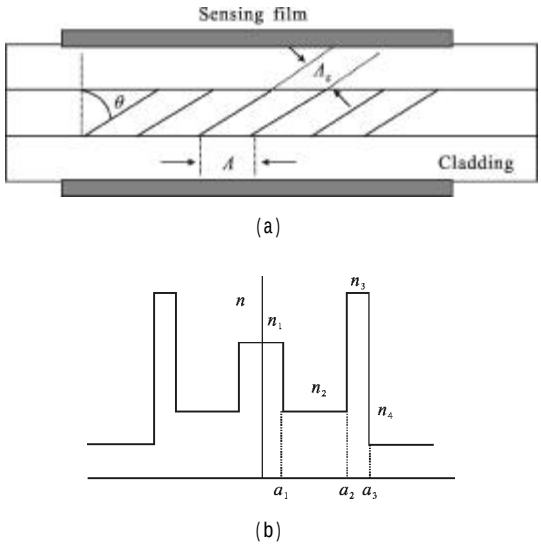

图 1 镀膜 TLPFG 结构示意图

Fig.1 Schematic of coated TLPFG

1.2 耦合模理论

倾斜光纤光栅中的模式耦合可以用耦合模方程描述[11]：

$$\frac{d\mathbf{A}_{co}}{dz}=if_{co-co}\mathbf{A}_{co}+i\sum_{l,m}\mathbf{g}^{+}_{cl,lm-co}\mathbf{A}_{cl,lm}\times\exp(-2i\delta_{cl,lm-co}z) \quad (1)$$

$$\sum_{l,m}\left[\frac{d\mathbf{A}_{cl,lm}}{dz}=+i\mathbf{g}^{-}_{cl,lm-co}\mathbf{A}_{co}\times\exp(2i\delta_{co-cl,lm}z)\right] \quad (2)$$

式中：$\mathbf{A}_{co}$ 为纤芯模的振幅；β_{co} 为相应传播常数；$\mathbf{A}_{cl,lm}$ 为 l 阶 m 次包层模的振幅；$\beta_{cl,lm}$ 为包层模传播常数，并有关系式 $\beta_{co}=(2\pi/\lambda)\mathbf{n}^{co}_{eff}$，$\beta_{cl,lm}=(2\pi/\lambda)\mathbf{n}^{cl,lm}_{eff}$，$\mathbf{n}^{co}_{eff}$ 和 $\mathbf{n}^{cl,lm}_{eff}$ 分别为纤芯模与包层模的有效折射率，可通过数值求解多层圆柱光波导的特征方程得到。$\delta_{co-cl,lm}$ 为失谐量：

$$\delta_{co-cl,lm}=\frac{1}{2}(\beta_{co}-\beta_{cl,lm}-2\mathbf{K}_g\cos\theta) \quad (3)$$

耦合模方程中 f_{co-co} 为纤芯模自耦合系数：

$$f_{co-co}=\frac{\omega}{2}\varepsilon_0\mathbf{n}_1^2\sigma(z)\int_0^{2\pi}d\phi\int_0^{a_1}rdr(\mathbf{E}_r^{co}\mathbf{E}_r^{co*}+\mathbf{E}_\phi^{co}\mathbf{E}_\phi^{co*}) \quad (4)$$

$\mathbf{g}^{\pm}_{cl,lm-co}$ 为纤芯模与包层模的互耦合系数：

$$\mathbf{g}^{\pm}=\frac{\omega}{4}\varepsilon_0\mathbf{n}_1^2\sigma(z)v\times\int_0^{2\pi}d\phi\int_0^{a_1}rdr$$

$$\exp(\mp 2i\mathbf{K}_g r\cos\phi\sin\theta)(\mathbf{E}_r^{cl}\mathbf{E}_r^{co*}+\mathbf{E}_\phi^{co}\mathbf{E}_\phi^{co*}) \quad (5)$$

式中：$\mathbf{E}_r$ 和 $\mathbf{E}_\phi$ 分别为模式场的径向和切向分量；$\mathbf{K}_g=\pi/\Lambda_g$。TLPFG 的互耦合系数中由于存在 $\exp(\mp 2i\mathbf{K}_g r\cos\phi\sin\theta)$ 项，高阶包层模(l>1)的耦合系数不为 0，即 TLPFG 能够将纤芯模耦合到高阶包层模。

公式(3)中令 $\delta_{co-cl,lm}=0$ 即为 TLPFG 的相位匹配条件，代入关系式 $\Lambda=\Lambda_g/\cos\theta$，则有：

$$\lambda_{res}=[\mathbf{n}^{co}_{eff}(\lambda_{res})-\mathbf{n}^{cl,lm}_{eff}(\lambda_{res})]\Lambda \quad (6)$$

可以发现，公式(6)与普通非倾斜 LPFG 的相位匹配条件完全一致，即谐振波长与倾角 θ 无关。作为 TLPFG 薄膜传感器，重点考察光栅光谱对薄膜折射率微小变化的响应，由公式(5)可知，倾角的变化将影响耦合系数，从而影响给定波长处的光谱透过率，因而可以预期，TLPFG 薄膜传感器的光谱透过率对环境参量变化比 LPFG 有更高的响应。

参考文献[11]研究指出，倾斜光纤光栅中 1 阶奇次包层模耦合系数大于偶次包层模。而 2 阶低次包层模耦合中，偶次包层模耦合系数大于奇次包层模，耦合系数最大值比 1 阶包层模耦合系数小 4 倍左右。3 阶包层模耦合系数特性与 2 阶相似，而耦合系数值进一步减小，只有一阶的 1/80。4 阶及以上包层模耦合系数值远小于 3 阶，因而一般只考察 1~3 阶包层模耦合。

镀膜 TLPFG 中 1~3 阶包层模耦合系数随光栅倾角 θ 的变化如图 2 所示。由图 2(a)可知，1 阶各次包层模的耦合系数在倾角为 80°之前近似保持恒定，而在倾角接近 90°时快速减小到 0，因此在 TLPFG 中纤芯模到 1 阶包层模的有效耦合可以发生在除了接近 90°的任意角度。与此形成对比的是，高阶包层模(l=2,3)在倾角到达 80°之前只是缓慢增加，接着在 88°附近快速到达最大值，如图 2(b)和 2(c)所示。图2所示的镀膜倾斜 LPFG 的耦合系数特性与参考文献[11]中给出的结果相似，当光栅倾角大于 80°时，2 阶和 3阶包层模耦合逐渐增强，而 1 阶包层模耦合逐渐减

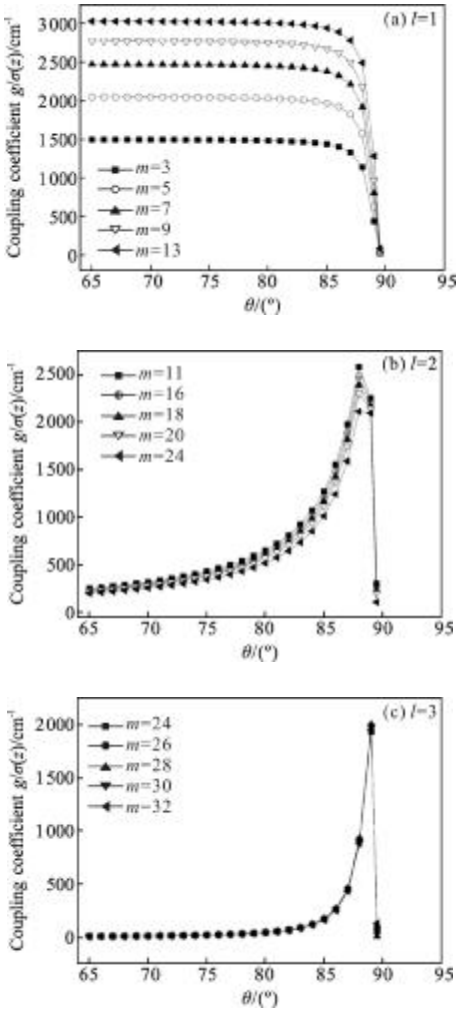

图 2 TLPFG 不同倾角的耦合系数

Fig.2 Coupling coefficients of TLPFG with respect to tilt angles

弱，当光栅倾角大于 85°时,2 阶和 3 阶包层模耦合系数与 1 阶包层模耦合系数相当，甚至大于 1 阶包层模耦合系数。这些耦合系数的变化特性将直接影响镀膜倾斜 LPFG 的透射谱特性,并影响倾斜 LPFG 薄膜传感器的设计思想和方法。

1.3 TLPFG 的透射谱

TLPFG 的透射谱可以通过数值求解耦合模方程(1)和(2)得到,设初值条件为 $A_{co}(0)=1$,$A_{cl,lm}(0)=0$,光栅长度为 L,则光栅透过率可以表示为 $T=|A_{co}(L)/A_{co}|^2$。

图 3 所示为数值求解耦合模方程得到的不同倾角 TLPFG 的 1 阶和 2 阶包层模耦合对应透射谱,其中光栅长度取 $L=2$ cm,图中数字指示的是 1 阶包层模耦合谐振峰对应的包层模次数。由图 3(a)可以看出，当倾角 $\theta=88°$时,2 阶包层模耦合的谐振峰耦合深度与 1 阶包层模相当,而图 3(b)和(c)则显示,当倾角减小到 80°和 70°时,2 阶包层模耦合的谐振峰明显减弱，倾角为 70°时,2 阶包层模耦合的谐振峰相比于 1 阶包层模进一步减弱,可近似忽略。由于 3 阶包层模耦合比 2 阶弱很多，因而 3 阶包层模耦合对应的透射谱未在图 3 中给出。

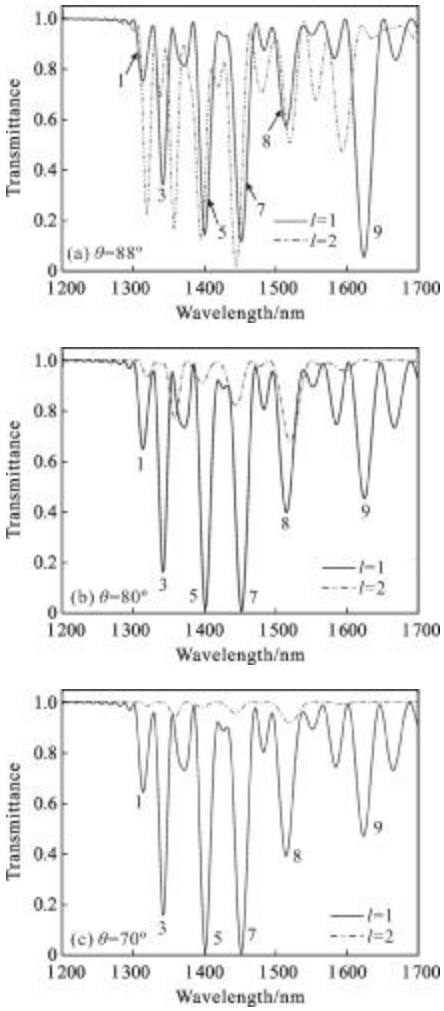

图 3 TLPFG 的透射谱

Fig.3 Transmission spectrum of TLPFG

综合图 2 和图 3 分析可知，当倾角大于 80°时，TLPFG 的透射谱中 1 阶和 2 阶包层模耦合产生的谐振峰耦合深度相当,在实际 TLPFG 薄膜传感器的输出谱信号中两者产生叠加，因而将难以提取由薄膜折射率变化引起的光谱响应信号。因此,在文中研究的 TLPFG 薄膜传感器中，考察的光栅倾角范围为 60°~80°,2 阶及以上阶数包层模耦合很弱可以忽略,重点考察 1 阶包层模耦合对应的光谱透过率对薄膜折射率变化的响应。相比于非倾斜 LPFG,TLPFG 中由于引入了光栅倾角,可以预期,同样是 1 阶包层模耦合,TLPFG 的相应光谱透过率更易受薄膜折射率变化影响。

2 TLPFG 传感器结构优化设计

作为光纤光栅薄膜传感器，当敏感薄膜与环境介质发生作用时，外界环境参量的微小变化将引起薄膜折射率的改变，从而导致 TLPFG 光谱变化,为表征 TLPFG 薄膜传感器对薄膜折射率变化的响应灵敏度,将光谱透过率 T 的梯度与薄膜折射率 n_3 梯度之比的绝对值 S_n:

$$S_n=\left|\frac{dT}{T}\Big/\frac{dn_3}{n_3}\right| \tag{7}$$

定义为 TLPFG 薄膜传感器的灵敏度,进而传感器的分辨率可定义:

$$\delta_n=S_n^{-1}\,n_3 dT/T \tag{8}$$

表示对薄膜折射率的最小分辨能力。由于 TLPFG 的光谱透过率受薄膜参数(h_3,n_3)、光栅结构参数(Λ,L,θ)等影响，因而 S_n 是一个与上述参数有关的多元函数,在 2.1 节和 2.2 节中笔者将分别考察光栅结构参数和薄膜光学参数对 S_n 的影响,通过最优化数值计算,寻找高响应灵敏度对应的最佳参数组合。

2.1 光栅参数对灵敏度的影响

图 4 (a) 给出了灵敏度最大值 $S_n|_{max}$ 随光栅长度和光栅倾角的变化关系，其中薄膜折射率 $n_3=1.75$,厚度 $h_3=200$ nm,光栅周期 $\Lambda=400$ μm,此时 1 阶 5 次包层模耦合的谐振波长为 1400 nm,$S_n|_{max}$ 定义为在给

定光栅长度和倾角前提下,在考察波长 1 380~1 400 nm 范围内 S_n 的最大值, 即在其他参数给定的条件下, 存在一个与 $S_n|_{max}$ 对应的最佳观测波长 λ_0。图 4(a)显示,TLPFG 薄膜传感器的灵敏度随不同光栅长度和倾角的组合而不同,最高可达到 10^5 量级,相比于非倾斜 LPFG 薄膜传感器[5]提高了一个数量级。图 4(b)给出了 $S_n|_{max}$ 为 10^5 的等高线图, 从中可以在其他参数给定情况下选择最佳光栅长度 L 和光栅倾角 θ, 以实现对薄膜折射率变化的高灵敏度响应。

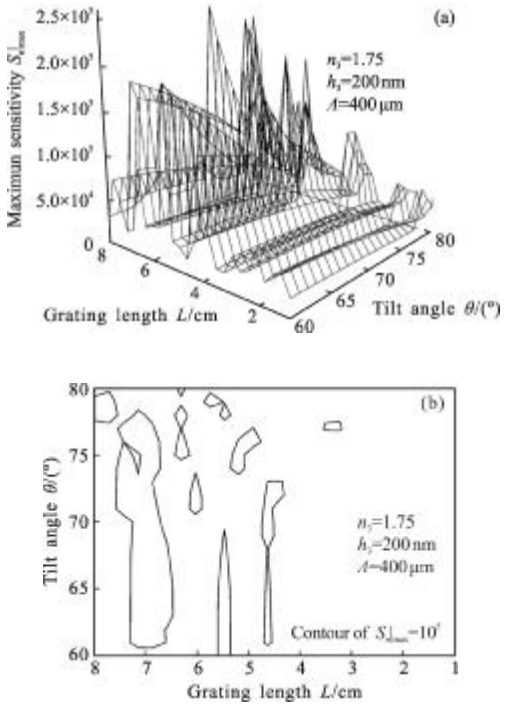

图 4 TLPFG 不同光栅长度和倾角的灵敏度 $S_n|_{max}$

Fig.4 Sensitivities of TLPFG $S_n|_{max}$ vs grating lengths and tilt angles

表 1 给出了 3 个典型的光栅长度和光栅倾角设计值及相应的灵敏度和分辨率。对于常用的光谱检测仪器,透过率 T 的变化率 dT/T 的测量精度取 10^{-3}, λ_0 为最佳观测波长,即为最大灵敏度对应的入射光波长。由表 1 可知, 选取合适的光栅长度和倾角,该 TLPFG 薄膜传感器的分辨率可达 10^{-9}。

表 1 典型光栅长度和倾角对应灵敏度及分辨率

Tab.1 Typical grating lengths and tilt angles and relevant sensitivities and resolutions

No.	θ/(°)	L/cm	λ_0/nm	$S_n\|_{max}$	δ_n
1	77	4.6	1 386.7	1.14×10^5	1.54×10^{-8}
2	74	4.4	1 391.5	1.94×10^5	9.04×10^{-9}
3	71	7.6	1 388.5	2.53×10^5	6.91×10^{-9}

光栅长度 L 为 4 cm 时,传感器灵敏度最大值随光栅周期和倾角的变化关系如图 5(a)所示,图 5(b)为相应的 $S_n|_{max}$ 为 10^4 和 10^5 的等高线图。由于不同光栅周期对应不同的谐振波长, 计算中对每一个确定的光栅周期, 选取不同的考察波长范围。由图可知, 不同的光栅周期和倾角对应有不同的最大灵敏度值,光栅周期取值在 450 μm 附近时,传感器灵敏度可达 10^5 量级,且随不同光栅倾角变化,光栅周期为 440 m 光栅倾角为 75°时,传感器灵敏度达到最大值 3.18×10^5。表 2 给出了典型光栅周期和倾角对应的传感器灵敏度和分辨率,数据显示,传感器对薄膜折射率的最小分辨率达 5.50×10^{-9}。

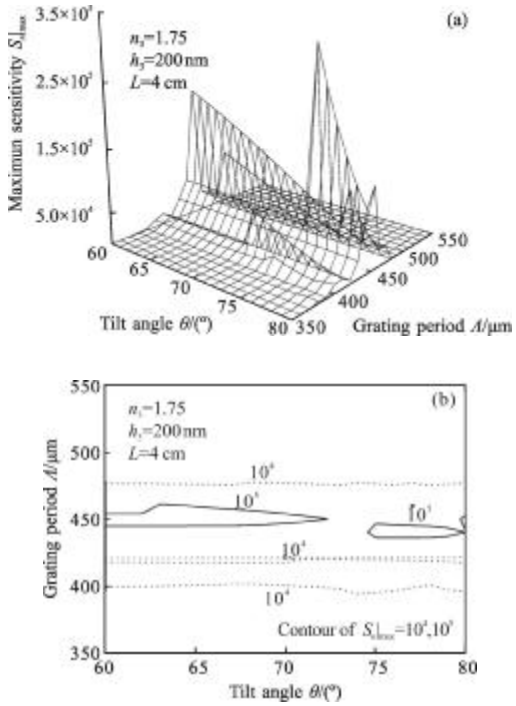

图 5 TLPFG 不同光栅周期和倾角的灵敏度 $S_n|_{max}$

Fig.5 Sensitivities of TLPFG $S_n|_{max}$ vs grating periods and tilt angles

表 2 典型光栅周期和倾角对应灵敏度及分辨率

Tab.2 Typical grating periods and tilt angles and relevant sensitivities and resolutions

No.	θ/(°)	Λ/μm	λ_0/nm	$S_n\|_{max}$	δ_n
1	71	410	1 419.8	7.44×10^4	2.35×10^{-8}
2	75	440	1 444.7	3.18×10^5	5.50×10^{-9}
3	60	450	1 467.8	2.07×10^5	8.46×10^{-9}

2.2 薄膜参数对灵敏度的影响

图 6(a)给出了在给定光栅结构参量 Λ=400 μm、L=3.5 cm、θ=70°时 $S_n|_{max}$ 随薄膜参数的变化关系,薄膜折射率 1.7~1.9,薄膜厚度 50~250 nm。不同的薄膜折射率和厚度对应不同的谐振波长, 因而对不同薄膜参数组合取不同的考察波长范围。由图可知,对于不同的薄膜折射率和厚度组合,TLPFG 薄膜传感器所能达到的最大灵敏度 $S_n|_{max}$ 各不相同,最高数量级为 10^5,n_3=1.85,h_3=150 nm 时,达到最大值 4.82×10^5,观测波长为 1 402.7 nm,相应的薄膜折射率分辨率为 3.84×10^{-9}。图 6(b)为相应 $S_n|_{max}$ 为 10^4 和 10^5 的等高线图,根据等高线可以选取设计高灵敏 TLPFG 薄膜传感器所需薄膜材料的折射率和厚度, 并可进一步根据 $S_n|_{max}$ 对应观测波长确定入射光波长。

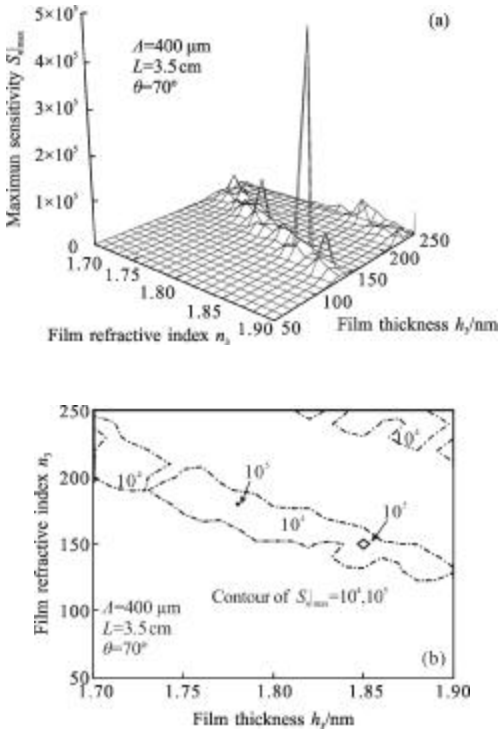

图 6 TLPFG 不同薄膜折射率和厚度的灵敏度

Fig.6 Sensitivities of TLPFG vs film refractive indexes and thicknesses

3 结 论

研究了表面镀制高折射率敏感薄膜 TLPFG 的耦合特性和薄膜折射率传感特性。研究表明,光栅倾角的变化不影响包层模耦合的谐振波长,但影响光谱透过率, 与非倾斜 LPFG 相比,TLPFG 中倾角的引入增强了光谱透过率对薄膜折射率变化的响应。θ<80°时,高阶包层模耦合产生的谐振峰很弱,基本可以忽略。通过分析 1 阶 5 次包层模透射谱对薄膜折射率变化的响应灵敏度得到了高灵敏度对应的薄膜光学和光栅结构参数组合。数值计算结果表明,TLPFG 薄膜传感器对薄膜折射率变化的响应灵敏度相比于非倾斜 LPFG 提高了一个数量级, 对薄膜折射率的分辨率可达 10^{-9}。研究结果可以为TLPFG 薄膜传感器设计提供理论基础和数据参考。

参考文献:

[1] Vengsarkar A M, Pedrazzani J R, Judkins J B. et al. Long period fiber grating based gain equalizers [J]. Optics Letters, 1996, 21(5): 336-338.

[2] James S W, Tatam R P. Optical fibre long-period grating sensors: characteristics and applications [J]. Measurement Science and Technology, 2003, 15: R49-61.

[3] Rees N D, James S W, Tatam R P. Optical fiber long-period gratings with Langmuir-Blodgett thin-film overlays[J]. Optics Letters, 2002, 27(9): 686-688.

[4] Villar I D, Achaerandio M, Matias I R, et al. Deposition of overlays by electrostatic self-assemble in long-period fiber gratings [J]. Optics Letters, 2005, 30(7): 720-722.

[5] Gu Z T, Xu Y P, Gao K. Optical fiber long-period grating with solgel coating for gas sensor [J]. Optics Letters, 2006, 31(16): 2405-2407.

[6] Cusano A, Iadicicco A, Pilla P, et al. Coated long-period fiber gratings as high-sensitivity optochemical sensors [J]. Journal of Lightwave Technology, 2006, 24(4): 1776-1786.

[7] Erdogan T, Sipe J. E. Tilted fiber phase grating [J]. Journal of the Optical Society of America A, 1996, 13(2): 296-313.

[8] Lu Y C, Huang W P, Jian S S. Full vector complex coupled mode theory for tilted fiber gratings [J]. Optics Express, 2010, 18(2): 713-726.

[9] Miao Yinping, Liu Bo, Zhao Qida. Refractive index sensing characteristic of tilted fiber Bragg gratings with different cladding-diameters [J]. Acta Optica Sinica, 2008, 28(11): 2072-2076. (in Chinese)

[10] Wei Shilei, Zhang Weigang, Fan Hongjian, et al. Study on spectral properties of tilted long-period fiber grating written by high-frequency CO_2 laser pulses [J]. Acta Optica Sinica, 2011, 31(8): 0806006(6pp). (in Chinese)

[11] Lee K S, Erdogan T. Fiber mode coupling in transimssive and reflective tilted fiber gratings [J]. Applied Optics, 2000, 39(9): 1394-1404.