

ZnO 粉末中无序激射现象时间分辨的研究*

孙 涛¹⁾²⁾ 黄锦圣²⁾ 张伟力¹⁾³⁾ 柴 路¹⁾ 王清月¹⁾ 王克伦²⁾

¹⁾ 天津大学精仪学院超快激光研究室, 光电信息技术科学教育部重点实验室, 天津 300072)

²⁾ 香港科技大学物理系, 九龙清水湾, 中国香港)

³⁾ 俄克拉荷马州立大学电气与计算机工程系, 激光与光子学研究中心, 斯帝尔沃特, OK 74078)

(2002 年 10 月 28 日收到, 2002 年 12 月 24 日收到修改稿)

采用抽运-探测时间分辨方法实验研究了半导体材料 ZnO 纳米颗粒粉末中的无序激射现象. 在 267nm 激光的抽运下, 通过精确控制抽运光的能量和样品表面的抽运面积, 获得了宽度小于 1nm 的单模无序激射光谱和多峰的多模无序激射光谱. 时间分辨的抽运-探测结果显示, 此时样品的上能级寿命仅为几个皮秒, 证明了 ZnO 粉末的单模无序光谱是受激辐射的结果.

关键词: 高散射介质, 多重散射, 抽运-探测, 无序激射

PACC: 1108L, 7280E, 7840G, 7847

光波在具有增益的高散射介质中的传播和无序激射现象一直引起广泛的关注. 早在 1968 年, Letokhov 就计算了光波在增益散射介质中的放大过程, 并预言了在增益散射介质中产生激射现象的可能性^[1]. 但一直到 20 世纪 90 年代初, 实验研究才取得了突破性进展. 相继在加入中性散射体的激光染料溶液中和由激光晶体研磨成的粉末中发现了类似于激光的激射现象^[2-7]. Cao 等人相继在 ZnO 多晶薄膜和粉末中发现类似激光的极窄激射光谱^[8-11], 这是由于光波在高散射介质中的强烈多重散射形成了类似激光谐振腔的闭合空间回路, 从而使光波在回路中不断被放大, 形成无序激射输出. 这种极窄光谱的无序激射现象引起了广泛的兴趣和研究^[12-14].

实验中使用的样品为 ZnO 粉末组成的薄片, 是由 ZnO 纳米颗粒粉末在高压下压制而成, 从 TEM 显微镜下看到 ZnO 颗粒尺寸为几十至几百纳米. 实验中首先以钛宝石放大器输出的 800nm, 200fs 激光脉冲和其倍频 400nm 激光混频后产生的 267nm 飞秒激光脉冲作为抽运光, 对 ZnO 粉末样品的出射光谱进行了研究. 为了控制抽运光在样品表面的面积, 将照射在样品表面的抽运光斑限制成一矩形(其长为 L 和 a). 通过精确控制抽运光的能量和样品表面的抽运面积, 实验发现 ZnO 样品的出射光谱出现单模无序激射尖峰, 其光谱宽度小于 1nm, 低于正常情况

下 ZnO 的荧光光谱宽度和 ASE 光谱宽度. 随着抽运能量的提高和抽运面积的扩大, 发现有多模无序激射峰出现, 如图 1 所示.

ZnO 样品中无序激射现象的产生是由于光波的多重散射在样品中形成散射回路所致. 闭合的散射回路形成了类似激光谐振腔的结构. 图 1 中光谱极窄的单模激光是在单个或少数几个散射回路中振荡产生的无序激光. 随着抽运能量的提高, 光波在更多散射回路中形成振荡, 产生多模状态的无序激射光谱. 另一方面, 抽运面积的增大使得样品中可以形成振荡的散射回路数量增加, 也可产生多模状态的无序激射光谱.

传统激光器中激光晶体的增益对输出光谱有窄化作用, 而且同时, 上能级粒子寿命会急剧下降. 实验中, 利用抽运-探测(Pump-Probe)的方法, 测量了输出无序激射光谱状态时 ZnO 粉末样品的上能级粒子寿命. 图 2 所示为实验光路. 实验中采用钛宝石放大器输出的 1kHz, 200fs, 800nm 激光脉冲及其倍频光脉冲作为光源. 为了避免探测到样品本身直接产生的无序激光, 在探测光路加入一斩波器对探测光的重复频率进行调制, 并采用锁相放大器对信号进行选择 and 放大. 从图 3 可以看到, 当抽运光脉冲能量为 0.7 μ J 时, 样品只有自发辐射的荧光出射, 其光谱宽度很宽. 同时记录到探测光脉冲强度呈指数衰减,

* 国家自然科学基金(批准号: 69978016), 高等学校优秀青年教师教学及研究奖励基金、霍英东教育基金会、天津市光电子联合研究中心基金、香港研究基金(批准号: HKUST6158/01P)资助的课题.

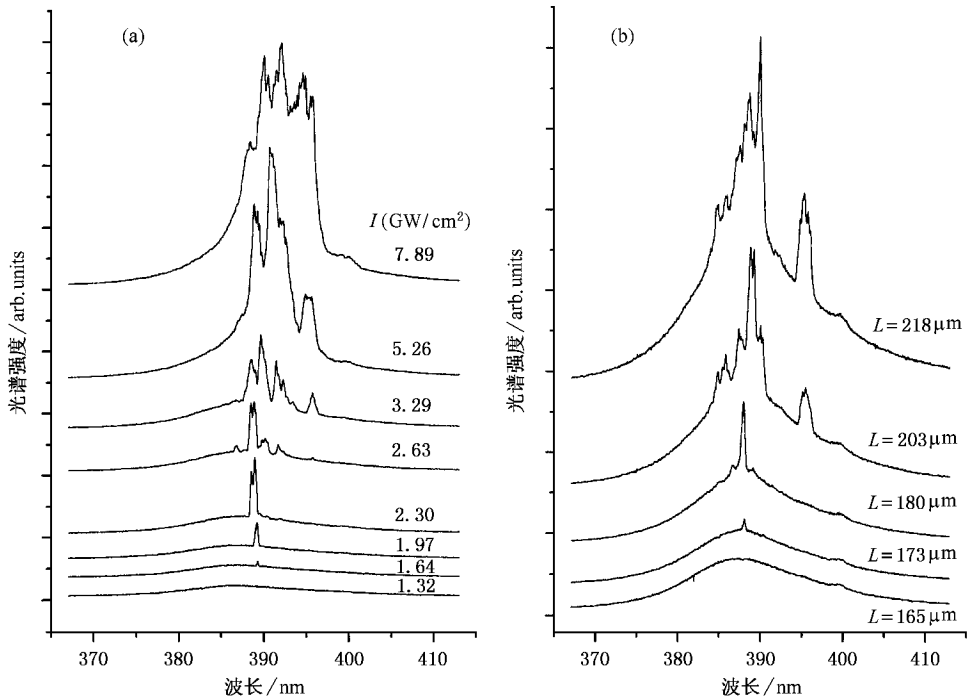


图1 267nm 飞秒激光抽运下 ZnO 的发射光谱 (a)固定抽运面积为 $a \times L = 75\mu\text{m} \times 178\mu\text{m}$; (b)固定抽运功率密度 $I = 2.59\text{GW}/\text{cm}^2$, $a = 75\mu\text{m}$

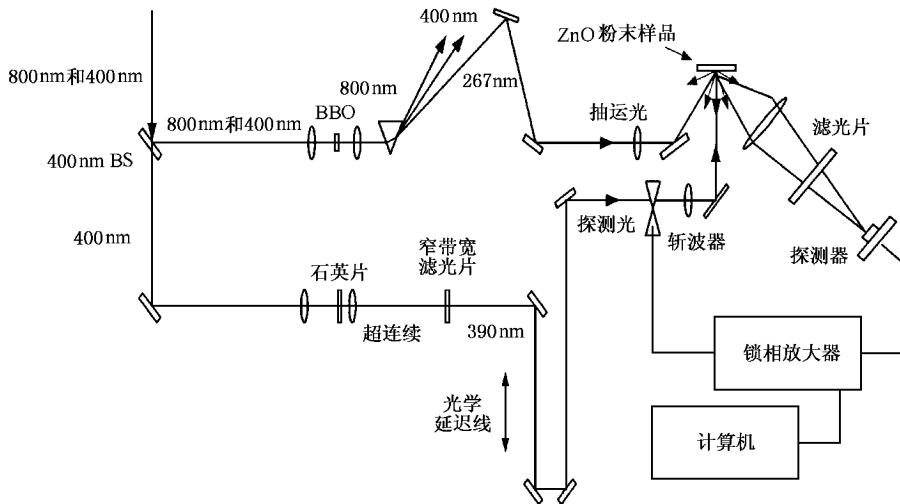


图2 飞秒激光抽运 ZnO 样品无序激光抽运 - 探测及相干背向散射测量的实验光路

此时样品的上能级寿命约为 30ps 。随着抽运功率的增加,探测光脉冲强度衰减曲线中出现快速衰减成分,表明样品中有受激辐射出现,同时样品输出光谱的宽度明显变窄。在抽运光脉冲能量为 $1.8\mu\text{J}$ 时,样品中粒子的上能级寿命急剧减小到几个皮秒,输出光谱宽度也窄化至约 5nm 。实验结果证明此时 ZnO 粉末中的多模激射光在时域上和频域上都与普通激光十分类似。

在如前所述的单模极窄光谱输出的情况下,极窄的谱峰有一个很宽的自发辐射背景,这需要使入射的探测脉冲应具有同样极窄的光谱宽度以保证结果的准确性。同时,单模输出需要严格控制抽运光的能量和光斑大小。实验结果如图 4 所示。实验中,采用 2nm 透射带宽的带通滤光片来选取探测光波长,从图 4 右上角的插图可以看出,探测光波长与单模受激发射的波长一致。图中探测光的时间衰减曲线

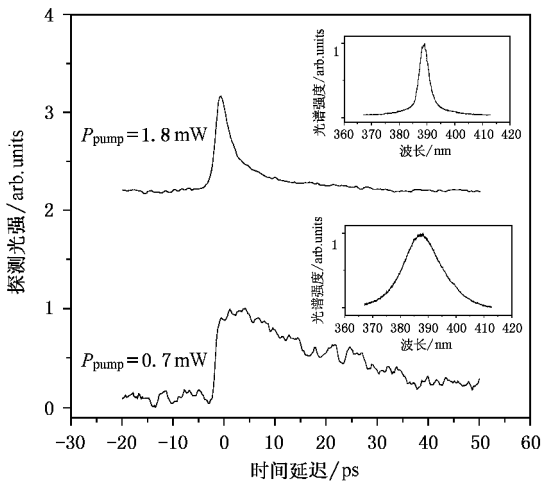


图3 不同抽运能量下探测光的时间衰减曲线(插图为样品中的出射光谱)

有一个快速衰减成分,与图3的高抽运功率时的情况相同.这表明了 ZnO 粉末极窄光谱宽度的单模输出也是由受激辐射过程造成的,进而说明在有增益的散射介质 ZnO 粉末中多重散射引起的无序光谱输出的激发态动力学过程与普通激光的产生过程是相同的.

经过对高散射介质 ZnO 粉末中的无序激射现象的实验研究,发现在精确控制抽运光的能量和样品表面抽运面积的情况下,可以获得极窄的无序激

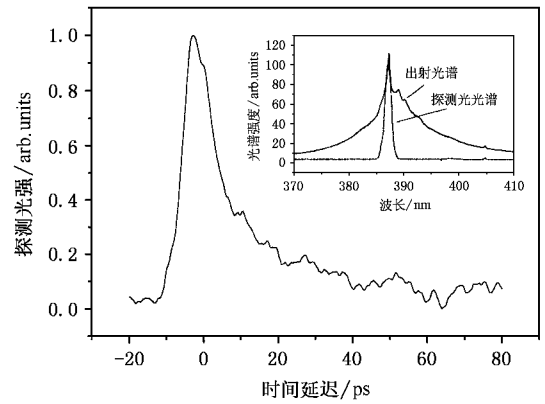


图4 单模受激辐射时探测光的时间衰减曲线(插图为探测光和单模受激辐射光的光谱)

射光谱.通过抽运-探测的方法对其进行了时间分辨研究,发现在输出极窄的无序光谱的情况下,样品中粒子的上能级寿命仅为几个皮秒,证明了 ZnO 粉末中极窄单模出射光谱的形成也是受激辐射的结果.

本文的实验工作在香港科技大学 Joyce M. Kuok 激子和光子学实验室完成.

- | | |
|----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| <p>[1] Letokhov V S 1968 <i>Sov. Phys. JETP</i> 26 835</p> <p>[2] Gouedard C, Husson D and Sauteret C <i>et al</i> 1993 <i>J. Opt. Soc. Am. B</i> 10 2358</p> <p>[3] lawandy N M, Balachandran R M, Gomes A S L <i>et al</i> 1994 <i>Nature</i> 368 436</p> <p>[4] Sha W L, Liu C H and Alfano R R 1994 <i>Opt. Lett.</i> 19 1922</p> <p>[5] Zhang W, Cue N and Yoo K M 1995 <i>Opt. Lett.</i> 20 961</p> <p>[6] Zhang W, Cue N and Yoo K M 1995 <i>Opt. Lett.</i> 20 1023</p> <p>[7] Hide F, Schwartz B J, Díaz-García M A <i>et al</i> 1996 <i>Chemical Physics Letters</i> 256 424</p> | <p>[8] Cao H, Zhao Y G, Ong H C <i>et al</i> 1998 <i>Appl. Phys. Lett.</i> 73 3656</p> <p>[9] Cao H, Xu J Y, Seeling E W <i>et al</i> 2000 <i>Appl. Phys. Lett.</i> 76 2997</p> <p>[10] Cao H, Zhao Y G, Ho S T <i>et al</i> 1999 <i>Phys. Rev. Lett.</i> 82 2278</p> <p>[11] Cao H, Xu J Y, Zhang D Z <i>et al</i> 2000 <i>Phys. Rev. Lett.</i> 84 5584</p> <p>[12] Wiersma D 2000 <i>Nature</i> 406 132</p> <p>[13] Cao H, Ling Y, Xu J Y <i>et al</i> 2001 <i>Phys. Rev. Lett.</i> 86 4524</p> <p>[14] Burin A L, Ratner M A, Cao H <i>et al</i> 2001 <i>Phys. Rev. Lett.</i> 87 5503</p> |
|----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|

Time-resolved study of the random lasing in ZnO powder^{*}

Sun Tao^{1,2)} K. S. Wong²⁾ Zhang Wei-Li^{1,3)} Chai Lu¹⁾ Wang Qing-Yue¹⁾ K. L. Wong²⁾

¹⁾*School of Precision Instrument and Optoelectronics Engineering, Tianjin University; Key laboratory of Optoelectronic Information Technical Science, EMC, Tianjin 300072, China)*

²⁾*Department of Physics, the Hong Kong University of Science & Technology, Clear Water Bay, Kowloon, Hong Kong, China)*

³⁾*School of Electrical and Computer Engineering, Center For Laser and Photonics Research, Oklahoma State University, Stillwater, Oklahoma 74078, USA)*

(Received 28 October 2002; revised manuscript received 24 December 2002)

Abstract

In this letter, we investigated random lasing phenomenon in ZnO powder using the pump-probe technique. Under 267nm laser pumping, supernarrow single-mode emission and multi-mode emission were observed by precisely controlling the pumping intensity and the excitation beam size on the sample. The supernarrow emission peaks are much narrower than the normal luminescence and ASE spectra. The time-resolved pump-probe measurement shows that the lifetime of the emission state above the lasing threshold is only a few picoseconds which demonstrates that the formation of supernarrow random lasing bandwidth is due to stimulated emission.

Keywords : highly scattering media, multiple scattering, pump-probe, random lasing

PACC : 1108L, 7280E, 7840G, 7847

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 69978016), the Teaching and Research Award Fund for Outstanding Young Teachers in Higher Education Institutions of MOE, the Fok Ying-dong Education Foundation for Young Faculty, and the Research Grant Council of Hong Kong (Grant No. HKUST6158/01P).