

纳米 ZnO 粉末中随机激光现象

陈 雷† 楼祺洪 王之江 董景星 魏运荣

(中国科学院上海光学精密机械研究所, 上海 201800)

(2005 年 10 月 26 日收到, 2005 年 7 月 14 日收到修改稿)

实验采用三倍频 Nd:YAG (波长 355 nm, 脉宽 8 ns, 频率 30 Hz) 脉冲激光器作为抽运光源, 在 ZnO 纳米粉末 (直径 ~ 100 nm) 中发现了类似激光现象, 并用环形腔理论模拟了 ZnO 的颗粒密度对平均自由程的影响, 从理论上证明在纳秒级激光器的抽运下, ZnO 纳米粉末也可以发射激光.

关键词: 类似激光, ZnO 纳米粉末, 平均自由程

PACC: 7847, 7280E, 7845

1. 引 言

1994 年, Lawandy 等^[1]用 532 nm 的脉冲激光器抽运掺有 TiO₂ 微粒 (平均直径 250 nm) 的若丹明 640 染料的形成的胶体悬浮液, 观察液体表面的发射光, 当抽运光强度超过某个阈值时, 发现了线宽很窄的发射峰. 研究表明, 这种激光现象和悬浮在液体中的 TiO₂ 微粒的散射密切相关. 但是, 由于实验中平均自由程远远大于光波波长, 因此从染料溶液中发射出的仅仅是一种类似激光 (laser like) 的辐射. 1999 年, Cao 等^[2]用皮秒级脉冲激光抽运直径 100 nm 的 ZnO 颗粒, 通过改变 ZnO 微粒的密度观察到自发辐射放大 (ASE) 到真正激光 (true laser) 的变化. Cao 把随机激光器分为相干反馈随机激光器和无反馈随机激光器两种, 由自发辐射放大形成的激光器称为无反馈随机激光器.

目前, 多数采用皮秒级脉冲激光器作为抽运源抽运 ZnO 多晶薄膜和粉末^[2], 而纳米级脉冲激光器用来抽运 ZnO, TiO₂ 颗粒的染料溶液 (染料颗粒是增益介质, ZnO 颗粒作为散射体)^[1, 3-7]. 文章采用纳秒级三倍频 Nd:YAG 脉冲激光器 (脉宽 8 ns, 重复频率 30 Hz) 作为抽运源抽运颗粒直径 ~ 100 nm 的 ZnO 纳米粉末试样, ZnO 同时作为散射体和增益介质.

2. 实 验

实验采用冷压的方法将 ZnO 纳米颗粒粉末压制成直径 $\phi 20 \text{ mm} \times 1 \text{ mm}$ 的薄片. 从扫描电镜下观察到 ZnO 粉末的颗粒尺寸大约为 100 nm. 实验采用调 Q 的三倍频 Nd:YAG (波长 355 nm, 脉宽 8 ns, 频率 30 Hz) 脉冲激光器作为光源. 激光通过自制的衰减器 (控制抽运光能量的大小), 经透镜聚集成圆形斑垂直入射到 ZnO 粉末样品表面上. 从样品侧面收集到的散射光, 通过光纤耦合进光谱仪 (光谱仪的分辨率是 0.6 nm), 计算机完成光谱的显示、存储和分析, 实验装置如图 1 所示.

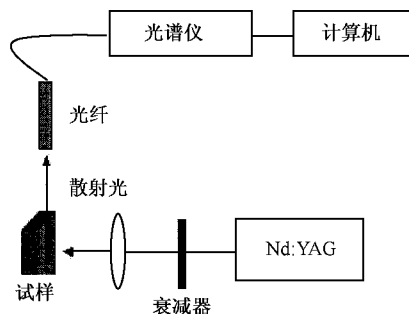


图 1 实验装置简图, 波长 355 nm, 脉宽 8 ns, 频率 30 Hz 的三倍频 Nd:YAG 脉冲激光器作为光源

† 通讯联系人. E-mail: chen1200520@163.com

3. 实验结果

光致发光实验可以证明在粉末薄层中是否实现了随机激光辐射现象. 典型的激光线宽是 0.1—0.2 nm. 在我们的实验中, 观测到的激发谱线的宽度最窄约为 6nm, 因此我们在 ZnO 粉末中观察到的只是一种类似激光的现象. 实验中, ZnO 颗粒同时起增益和散射的作用. 固体粉末中的激射现象与在染料溶液出现的现象相同. 图 2 给出当激发光强改变时, ZnO 辐射光谱的变化曲线. 从图中可以清楚的看到, 在低激发强度时, 辐射光呈现出一个较宽的自发辐射谱. 随激发强度增加, 频率靠近增益曲线中心处 (390nm 附近) 的光被优先放大. 光子通过受激辐射在离开增益体之前产生另一个光子, 因而光子密度显著增加. 增益光谱最大值附近频率的散射强度的突然增加, 导致散射光谱变窄. 随着激发强度的增加, 散射谱线宽度(半高全宽)随抽运强度显著减小 (见图 3). 这更进一步证明了在 ZnO 系统中存在类激光现象.

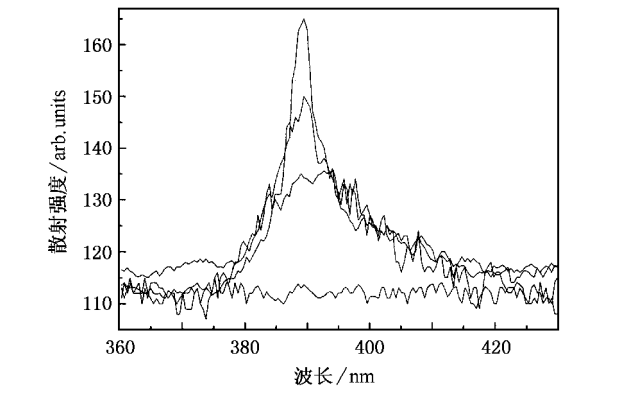


图 2 ZnO 粉末的受激发射光谱, 抽运强度从下到上增加

平均自由程 l (光波矢方向在被一个散射体随机化前所传播的长度) 在散播系统中起着非常重要的作用, 它是衡量介质内散射光波强弱的量. 当粒子的平均自由程较长时, 光子相干叠加的平均效果等于零, 所以没有相干效应. 大多数随机材料由于散射颗粒和颗粒间的距离较大, 因此不能产生受激辐射现象. 增加散射颗粒的密度, 平均自由程将减小. 当颗粒密度增加到足够大时, 由于散射的影响, 光子在介质中滞留时间增加, 散射微粒将改变发射谱的性质, 使发射峰变窄.

我们采用环形腔理论^[8]模拟颗粒密度对于平均

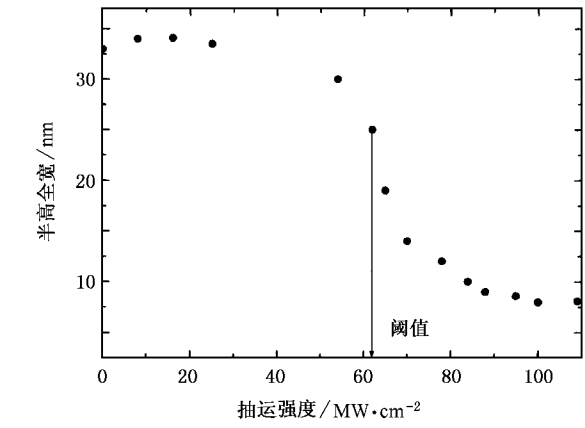


图 3 半高全宽随抽运强度的变化曲线

自由程的影响. 假设增益介质是浓度为 5mol/m³ 的若丹明 640 溶液, 直径 100nm 球形的 ZnO 纳米粉末作为散射体, 抽运光束直径为 3mm. 图 4 描述了平均自由程随 ZnO 颗粒密度的变化曲线. 图中清楚的显示随 ZnO 颗粒密度的增加, 平均自由程减小. 当粉末薄层中颗粒间的距离足够近, 即粉末介质的散射平均自由程接近光波波长时, 产生强相干作用. 光子在粉末薄层中所走的路径就可以是封闭的, 形成封闭回路或闭合环. 在随机介质中, 这些闭合环起到共振腔的作用提供反馈和实现放大.

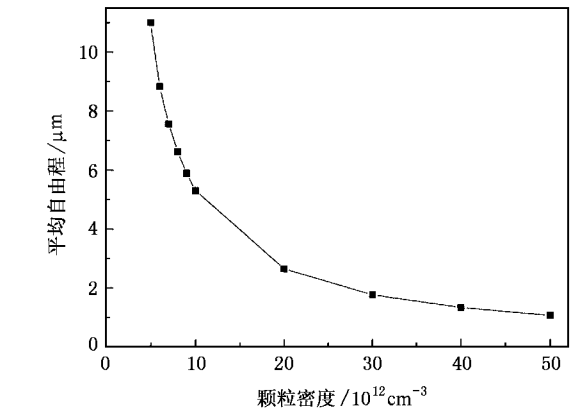


图 4 平均自由程随 ZnO 颗粒密度的变化曲线

4. 讨 论

光子散射平均自由程远大于光波长, 光子在粉末里面来回的传播就像弹球机中的球一样, 在光路中不能形成相干反馈现象, 因而在实验中所观察到的是放大的自发辐射. 在散射中, 散射体的作用是改变自发辐射放大的方向. 散射体能够影响输出的光

谱和时间特性.也就是说,散射体将使输出光谱变窄.随着抽运能量的增加,光散射增加了增益区散射光的光程,因此峰值处的强度迅速增加.同样,随着抽运能量的增加增益长度减小.最终导致,在增益光谱最大值附近处的频率的增益长度接近光子的平均光程长.光子通过受激辐射在离开增益体之前产生另一个光子,因而光子密度显著增加.增益光谱最大值附近频率的散射强度的突然增加,导致散射光谱变窄.增益系数在特定波长上具有最大值,通过介质传播后,这个波长上的光比其他波长上的光要被放

大许多倍,因此,在输出光谱上占主导地位.

为了获得光的放大,最简单的方式就是光激发,但是只有约 1% 的光能够被 ZnO 粉末吸收,其余的光被全部散射掉,这使得随机介质的抽运效率很低.这就决定,外界必须要提供高的抽运光强.实验证明,脉宽 8ns 的三倍频 Nd:YAG 激光器是随机激光实验中脉宽最大的抽运源,而脉冲宽度越大产生随机激光的阈值越高.若增加 ZnO 的颗粒密度将会出现随机激光现象.

- [1] Lawandy N M, Balachandran R M 1994 *Nature* **368** 436
[2] Cao H, Zhao Y G, Ho S T *et al* 1999 *Phys. Rev. Lett.* **82** 2278
[3] Cao H, Xu J Y, Chang S H and Ho S T 2000 *Phys. Rev. E* **61** 1985
[4] Cao H, Xu J Y, Seeling E W *et al* 2000 *Appl. Phys. Lett.* **76** 2997

- [5] Burin A L, Ratner M A, Cao H *et al* 2001 *Phys. Rev. Lett.* **87** 215503-1
[6] Sun T, Wong K S *et al* 2003 *Acta Phys. Sin.* **52** 2127 (in Chinese)[孙涛、黄锦圣等 2003 物理学报 **52** 2127]
[7] Zhu S H, Huang G W, Cui W N 2002 *Chin. Phys.* **11** 919
[8] Balachandran R M, Lawandy N M 1997 *Opt. Lett.* **22** 319

Random lasing in ZnO nanoparticles

Chen Lei[†] Lou Qi-Hong Wang Zhi-Jiang Dong Jing-Xing Wei Yun-Rong

(Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Shanghai 201800, China)

(Received 26 October 2004; revised manuscript received 14 July 2005)

Abstract

In our experiment, the ZnO nanoparticles (diameter about 100nm) are optically pumped by the third harmonics (355 nm wavelength) of a pulsed Nd:YAG laser (30Hz repetition ration rate, 8ns pulse width). Laser-like light emission was observed in the ZnO nanoparticles. We simulate the ZnO particle density transport versus mean free path using the ring cavity theory. The result shows that random lasing can be produced in the ZnO particle with Nd:YAG (pulse width 8 ns).

Keywords: laser like, ZnO nanopowders, transport mean free path

PACC: 7847, 7280E, 7845

[†] Corresponding author. E-mail: chenl200520@163.com