

随机介质 ZnO 激光的一种整体效应模型^{*}

王慧琴 刘正东[†]

(南昌大学近代物理研究所,南昌 330047)

(南昌大学材料科学与工程学院,南昌 330047)

(2005 年 6 月 21 日收到,2005 年 10 月 28 日收到修改稿)

从实验现象出发建立了无序介质激光的一种整体散射效应物理模型,认为无序介质激光是无序介质中局域-非周期-类结构与相匹配的抽运光相互作用的结果.并以 ZnO 粉末激光参数为例进行数值模拟,结果与实验定性符合.

关键词:无序增益介质,局域-非周期-类结构

PACC:4255P,4225F,7155J

1. 引 言

1968 年,Letokhov 计算了增益介质中随机光放大和光散射的光学特性,认为由于扩散反馈使随机增益介质中可能产生激光^[1];1994 年,Lawandy 等人把二氧化钛悬浮在若丹明染料中,发现了有增益介质的多次散射,从实验上大大推进了 Letokhov 的工作^[2];1996 年,Wiersma 等人将激光介质磨成粉末制成随机增益介质,发现被激发的激光晶体粉末的出射光具有良好的单色性,并有瞬态尖峰脉冲输出,与普通激光所不同的是没有外在的光学谐振腔^[3];1999 年,Cao 研究组在研究 ZnO 半导体粉末的荧光光谱时发现,用 Nd:YAG 激光器的多倍频光正入射到 ZnO 薄膜上,当激发抽运光的强度超过某个阈值时 ZnO 薄膜上出现颗粒状发光区,这些亮点在介质中的位置是随机的且随激发场强和被照射区域及角度的变化而变化,经测定,这些发光点的辐射光子统计满足 Poisson 分布,即无序介质在一定的条件下出现了激光.Cao 认为这种激光辐射与光子局域化有关,并区分了无相干反馈随机激光器和相干反馈随机激光器^[4-8].由于无序介质激光没有共振腔,它在光子集成等方面有很大的潜在应用前景^[9].

2. 随机介质激光的已有理论

为了解释无序介质激光辐射,人们提出了一系列的理论,如随机增益介质光散射理论^[3,10]、环形腔理论^[8,11-15]、环形波导理论^[16]等.

随机增益介质光散射理论主要研究了增益和多重散射对介质中光传输的影响,解释了增益介质中自发辐射放大现象(ASE),对无相干反馈的激光现象有较好的解释,可以解释包括临界体积、阈值等很多随机介质中的光学特性.但这个理论只适合解释那些散射微粒的尺寸和平均自由程远大于光波长的弱散射介质,因为它忽略了光的波动性和光子的相位关系,只考虑了光子数的分布,不能反映介质中光波之间的干涉,所以不能解释随机介质中光子的局域化现象.

环形腔理论认为无序激光的机理是对应于光子的安德森(Anderson)局域化,这一理论主要用来研究高增益强散射介质,认为光子通过多次散射有可能形成一个闭合回路或闭合环,这些闭合环类似于一个环形共振腔,可以提供相干反馈,实现共振放大的激光.介质中随机存在着许多这样的环形腔,介质的辐射光就是这些环形腔输出的叠加,这个理论用环形腔的概念定性解释了光谱特性、空间分布、输出特性、临界体积等随机激光器的光学特性.随后 Cao

^{*} 国家自然科学基金(批准号:60278016 和 10464002)资助的课题.

[†] E-mail: lzdgroup@ncu.edu.cn

等人进一步提出了准态模型,强调准态之间的耦合并说明了激光的损耗,解释了环形腔的阈值特性,对环形腔理论作了补充.但这一理论的核心概念(环形腔)是一个用几何光学描述的光子无规行走,缺乏对环形腔的定量描述.

环形波导理论认为环形波导的形成不需要强散射、高增益的随机介质,在弱散射介质中也可以形成环形波导,因此,在同样的随机介质中,形成高 Q 值环形波导的概率远大于环形腔的形成概率.这个理论揭示了环形波导的形成和介质结构特征相互关系,介质中环形波导的形成和介质的介电常数的涨落密切相关,改变介质介电常数的涨落可在介质中形成高 Q 值的环形波导.

3. 整体散射效应模型

注意到产生无序激光要求介质颗粒的尺寸基本均匀并接近光波波长(在薄膜中 ZnO 的颗粒大小约为 100nm ,在团簇中 ZnO 的颗粒大小约为 50nm),堆积比较密实,且具有较大的折射率,受照面积必须大于某一临界值,抽运光强必须大于某一阈值的条件下才有可能有激光辐射.图 1 为 ZnO 粉末薄层在不同强度的光抽运下的辐射谱^[7],具体表现为以下几个特点: 1) 阈值,当抽运强度较弱时,辐射光呈现出一个较宽的自发辐射谱;当抽运强度超过一定数值(阈值)时,发射谱中出现尖锐的发射峰,其线宽小于 0.3nm ,为阈值以下自发发射峰的 $1/30$;当抽运强度进一步增加时,将有更多更窄的分离尖峰出现,其线宽变为阈值以下自发发射峰的 $1/50$.充分显示了光抽运的阈值效应,其阈值大约为 $700\text{kW}/\text{cm}^2$. 2) 存在临界激发面积.受激辐射的阈值依赖于激发面积,激发面积越小则需要激发阈值越高,若激发面积小于某一临界值,则无论抽运光多强都无受激辐射产生.对不同的激发面积,有不同的受激辐射光谱,当激发面积增大到一定程度,受激辐射谱线趋于连续化. 3) 输出的无序性.无序激光的阈值、出射方向、在介质中的空间分布等都是无序分布的. 4) 受激辐射在各个方向都能观察到,并且谱线结构随观察角度而变.

这些重要的特点提示我们可以从另一个角度去认识这个现象.无序介质激光可看作是无序介质与相匹配的抽运光相互作用整体散射效应的结果^[17],这不同于光子的无规行走形成闭环环^[8, 11-15]的理论.在这种无序介质中,如果它的颗粒大致均匀,尺

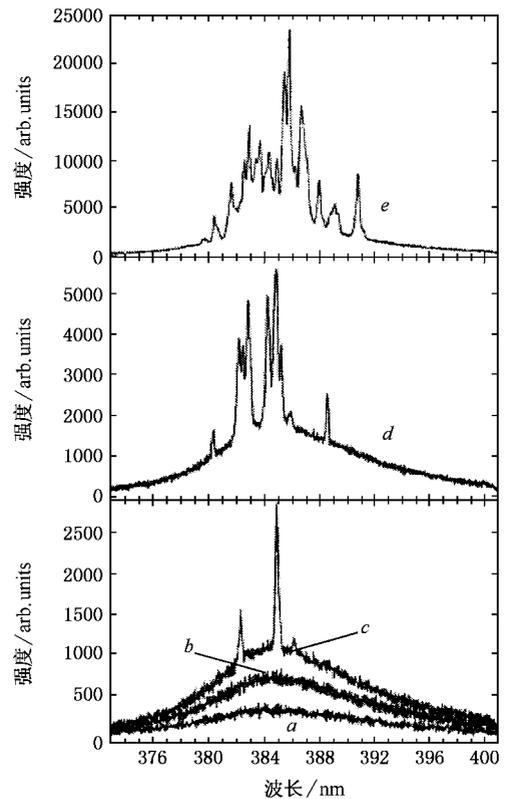


图 1 ZnO 粉末薄层的发射谱(实验)该图取自文献[7]的实验数据图, a, b, c, d, e 五条曲线分别对应抽运光强度为 $400, 562, 763, 857, 1387\text{kW}/\text{cm}^2$ 时的发射谱, ZnO 粉末薄层的厚度为 $6\mu\text{m}$, 激发面积为 $1600\mu\text{m}^2$)

寸合适,堆积比较密实,且折射率与间隔它的另一介质(如空气)适当匹配,在合适的边界条件下,在局部就有可能形成一些介于完全无序和完全有序之间的一种类结构,我们称之为“局域-非周期-类结构”,例如 ZnO 团簇的球形界面实际上已提供了一个相对有一定规律的边界条件,它势必影响团簇内部的介质微粒的分布,使之形成一些有一定分布规律的类结构.即在大范围的无序介质中,在一定的条件下其内部存在着众多的局域-非周期-类结构.当一束强度频率合适的抽运光照射到一定面积的无序介质上,由于介质中的局域-非周期-类结构的多重散射所形成的干涉效应而导致复杂的电磁场局域模存在.若局域-非周期-类结构所对应的某些局域模与激发场相匹配时,在抽运光足够强的情况下就有可能被激发形成激光.也就是说,无序介质在一定的内在和外部条件下,有可能形成某些局域-非周期-类结构与抽运光相互作用的量子动力学系统而产生受激辐射.当然,不同的方向所形成的局域-非周期-类结构系统具有不同的特性,因此在各个方向都能观

察到受激辐射谱,并且谱线结构随观察角度而变化,这方面的研究将在后继的工作中发表。

4. 数值模拟结果

4.1. 局域-非周期-类结构的本征模

下面以 ZnO 粉末薄层为例进行计算,并取 $\varepsilon_a = 9\varepsilon_0$, $\varepsilon_b = \varepsilon_0$, $\mu_a = \mu_b = \mu_0$, 则 $n_a = \sqrt{\varepsilon_a \mu_a}$, $n_b = \sqrt{\varepsilon_b \mu_b}$, 设第 k 个 ZnO 纳米颗粒大小为 $d_{a,k} = a_0(1 + \alpha\eta_{a,k})$, $a_0 = 100\text{nm}$, 第 $k, k+1$ 两次散射颗粒之间的空气层为 $d_{b,k} = b_0(1 + \beta\eta_{b,k})$, $b_0 = 300\text{nm}$, η_a, η_b 均为 $[-0.5, 0.5]$ 范围内的随机数, α, β 均取 0.5。

利用转移矩阵进行数值模拟计算,当光从某一方向经过第 k 个粒子散射后到第 $k+1$ 个粒子时,其电磁场满足

$$\begin{bmatrix} \mathbf{k} \times \mathbf{E}_k \\ \mathbf{H}_k \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \cos \xi_{a,k} & i \sin \xi_{a,k} / n_a \\ i n_a \sin \xi_{a,k} & \cos \xi_{a,k} \end{bmatrix} \times \begin{bmatrix} \cos \xi_{b,k} & i \sin \xi_{b,k} / n_b \\ i n_b \sin \xi_{b,k} & \cos \xi_{b,k} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \mathbf{k} \times \mathbf{E}_{k+1} \\ \mathbf{H}_{k+1} \end{bmatrix},$$

其中 \mathbf{E}, \mathbf{H} 是介质中的电磁场, $\xi_{a,k} = \frac{2\pi}{\lambda} n_a d_{a,k} \cos \theta_{a,k}$, $\xi_{b,k} = \frac{2\pi}{\lambda} n_b d_{b,k} \cos \theta_{b,k}$ 分别为光经过第 k 个 ZnO 纳米颗粒和空气层的位相厚度。

这样通过转移矩阵的模拟计算和电磁场各个方向的叠加,可计算出一束光照射到一定面积的 ZnO 粉末薄层可能具有的本征模。

注意到图 1 所示的实验介质的薄膜厚度约 $6\mu\text{m}$, 受照面积为 $1600\mu\text{m}^2$, 受照体积约为 $V = 9600\mu\text{m}^3$ 。模拟计算发现,若模拟计算的局域-非周期-类结构只涉及到 50 个粒子,它所形成的局域模大部分不在 ZnO 的增益波长($\lambda_0 = 385\text{nm}$)附近;如果将面积扩大 100 倍,其多重散射的本征模有的符合激发条件,但存在的概率比较小,图 2 所示是某一次模拟结果,若我们进一步增大模拟面积接近该实验的激发面积,数值模拟结果如图 3,显示符合激发条件的局域模增加了,其结果基本能反映出临界面积的 ZnO 粉末薄层的可能出现的谱结构。可见在小范围内很难形成满足无序激光条件的局域模,必须要有足够大的区域足够多的粒子参与的多重散射才能满足无序激光的形成条件,即无序激光辐射要求受照面积大于某个临界值。

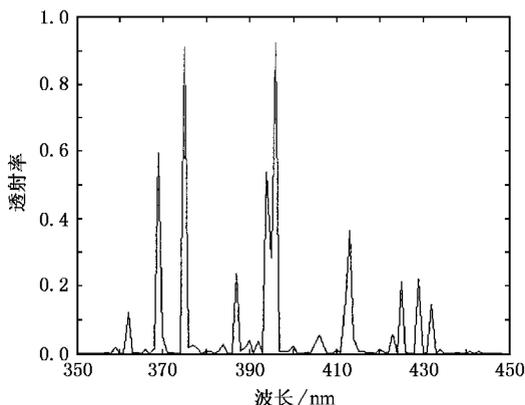


图 2 小面积情况下的局域模

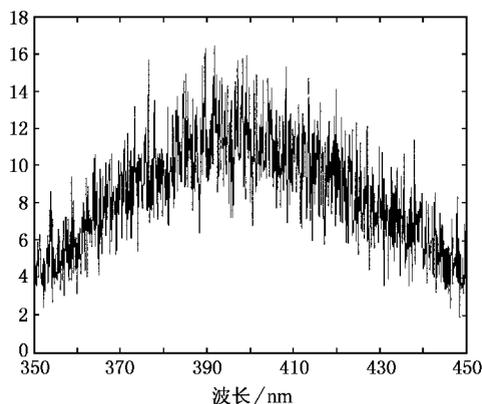


图 3 接近实验临界面积的局域模

4.2. 无序介质激光输出特性模拟

在随机激光理论中,还有一个重要的因子,就是增益长度 L_g . L_g 与样品的抽运光照射的体积有密切关系.若受照体积 $V = 9600\mu\text{m}^3$, 而平均散射自由程 $L = 0.8\lambda = 310\text{nm}$, 因而根据理论计算得增益长度 $L_g(\text{theory}) \sim V^{2/3}/L = 2.8\text{nm}^{[7]}$ 。

设 $g(\nu_0)$ 为 ZnO 介质在中心频率的增益系数,在中心波长 $\lambda_0 = 385\text{nm}$ 时 $g(\nu_0)$ 的实验测量值约为 $300/\text{cm}^{[18]}$, 考虑均匀加宽,则增益系数 $g(\nu_1)$ 与频率的关系为^[19]

$$g(\nu_1) = g(\nu_0) \frac{\left(\frac{\Delta\nu}{2}\right)^2}{(\nu_1 - \nu_0)^2 + \left(\frac{\Delta\nu}{2}\right)^2},$$

$\Delta\nu$ 为均匀加宽的谱宽,若取 $\Delta\lambda = 0.3\text{nm}$, 则 $\Delta\nu = \frac{c\Delta\lambda}{\lambda^2} = 6.07 \times 10^5 \text{MHz}$ 。

进一步代入相应的增益系数和增益长度进行发射谱的模拟计算,结果如图 4 所示。

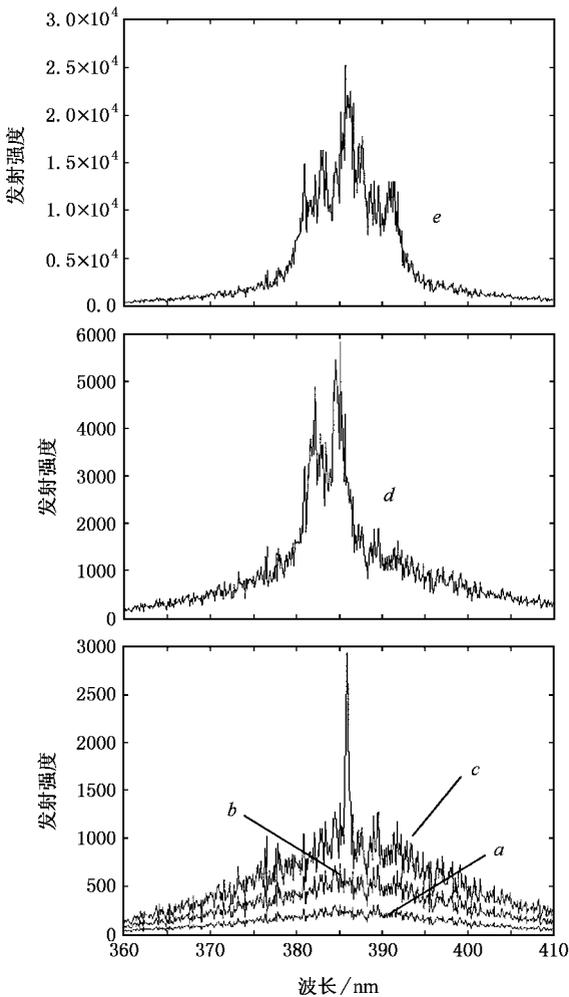


图4 模拟计算 ZnO 粉末薄层的发射谱 (a, b, c, d, e 五条曲线对应的抽运光强度分别为 $400, 562, 763, 857, 1387 \text{ kW/cm}^2$)

当抽运光强度低于阈值时,由于介质的损耗,增益长度 L_g 小,所有的局域模均不能形成相干反馈而振荡,故出射的只是漫射谱,结果如图4中 a, b 两条谱线.

当抽运光强高于阈值时,介质的增益大于损耗,增益长度 L_g 大,能形成相干反馈,故与增益波长匹配的局域模有可能被激发而辐射激光,结果如图4中 c, d, e 谱线所示.随着抽运光增强,增益长度 L_g 增大,会有更多的局域模被激发,因此有更多的发射峰,受激辐射谱线趋于连续化,如图4曲线 e .数值模拟结果与实验定性符合.

5. 结 论

从无序介质受激辐射实验现象出发,提出无序介质在一定的内部和外部条件下存在局域-非周期-类结构,这些结构与相应的抽运光场相互作用时可出现复杂的光场局域模.当增益介质的增益波长与该局域模匹配时,在抽运光足够强和抽运面积足够大的情况下就有可能形成激光辐射.本文以 ZnO 粉末激光的参数为例进行了数值模拟,结果与实验定性符合.注意到本文模型阐述的无序激光机理是无序介质在一定条件下与相匹配的抽运光相互作用的整体散射效应,这与光子随机行走形成闭环的理论是不同的.

感谢谢应茂博士尤素萍硕士的有益讨论.

- [1] Letokhov V S 1968 *Sov. Phys. J. EPT* **26** 835
- [2] Lawandy N M, Balachandran R M, Gomes A S L *et al* 1994 *Nature* **368** 436
- [3] Wiersma D S, Lagendijk A 1996 *Phys. Rev. E* **54** 4256
- [4] Gao H, Zhao Y G, Ong H C *et al* 1998 *Appl. Phys. Lett.* **73** 3656
- [5] Cao H, Zhao Y G, Ong H C *et al* 1999 *Phys. Rev. B* **59** 15107
- [6] Cao H, Xu J Y, Zhang D Z *et al* 2000 *Phys. Rev. Lett.* **84** 5584
- [7] Gao H, Zhao Y G, Ho S T *et al* 1999 *Phys. Rev. Lett.* **82** 2278
- [8] Cao H, Ling Y, Xu J Y *et al* 2001 *Phys. Rev. Lett.* **86** 4524
- [9] Wiersma Diederik S 2000 *Nature* **406** 132
- [10] Balachandran M, Lawandy N M, Moon J A 1997 *Opt. Lett.* **22** 319
- [11] Buda A L, Ratner M A, Cao H *et al* 2001 *Phys. Rev. Lett.* **87** 215503
- [12] Ling Y, Cao H, Burin A L *et al* 2001 *Phys. Rev. A* **64** 063808
- [13] Sun T, Huang J S, Zhang W L *et al* 2003 *Acta Phys. Sin.* **52** 2127 (in Chinese) [孙 涛、黄锦圣、张伟力等 2003 物理学报 **52** 2127]
- [14] Liu X D, Li S G, Hou L T *et al* 2002 *Acta Phys. Sin.* **51** 2117 (in Chinese) [刘晓东、李曙光、侯蓝田等 2002 物理学报 **51** 2117]
- [15] Yao Z G, Zhang X Q, Shang H K *et al* 2005 *Chin. Phys.* **14** 1205
- [16] Apalkom V M, Raikh M E, Shapiro B 2002 *Phys. Rev. Lett.* **89** 016802
- [17] Xie Y M, Liu Z D 2005 *Phys. Lett. A* **341** 339
- [15] Yao Z G, Zhang X Q, Shang H K *et al* 2005 *Chin. Phys.* **14** 1205
- [18] Wang X Q, Du G T, Jiang X Y *et al* 2000 *Semiconductor Optoelectronics* **4** 233 [王新强、杜国同、姜秀英等 2000 半导体光电 **4** 233]
- [19] Zhou B K, Gao Y Z, Chen T R *et al* 2000 *Leser Theory* (fourth edition) [Beijing :National Defence Industry Press] p123 (in Chinese) [周炳琨、高以智、陈侗嵘等 2000 激光原理 第四版(北京 国防工业出版社 第 123 页)]

A mode of holistic effect in random laser^{*}

Wang Hui-Qin Liu Zheng-Dong[†]

(*Institute of Modern Physics , Nanchang University , Nanchang 330047 , China*)

(*School of Materials Science and Engineering , Nanchang University , Nanchang 330047 , China*)

(Received 21 June 2005 ; revised manuscript received 28 October 2005)

Abstract

Based on the experimentally observed phenomena of random laser , a new physical holistic effect model is studied. The random laser is due to the interaction of the local aperiodic quasi - structure with matching pump light . The random laser in ZnO powder is simulated by numerical calculation , and the results are coincident with experimental phenomena qualitatively .

Keywords : random media , local aperiodic quasi - structure

PACC : 4255P , 4225F , 7155J

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 60278016 and 10464002).

[†] E-mail : lzdgroup@ncu.edu.cn