

同材质颗粒不同填充密度的随机介质中 光场的空间分布^{*}

王慧琴^{1)†} 刘正东^{1)‡,†} 王 冰³⁾

1) 南昌大学材料科学与工程学院, 南昌 330031)

2) 南昌大学物理实验中心, 南昌 330031)

3) 南昌大学近代物理研究所, 南昌 330031)

4) 南昌大学纳米技术工程研究中心, 南昌 330047)

(2007 年 5 月 6 日收到, 2007 年 9 月 5 日收到修改稿)

用时域有限差分法研究了同一材质的颗粒在不同填充密度下的随机介质中光局域化问题. 依据随机介质激光的实验参数, 模拟了颗粒填充密度不同的随机介质中光场的空间分布. 结果表明: 当散射颗粒的散射平均自由程与波长相当时, 随机介质中的光场分布呈现局域化的特征, 而且随着颗粒填充密度增大, 光场的局域化程度增强. 因此, 在同样的抽运激励下, 颗粒填充密度越大的随机增益介质越容易产生激光辐射. 数值模拟结果与实验定性符合.

关键词: 随机激光, 时域有限差分法, 颗粒填充密度, 局域化

PACC: 4225, 4260D

1. 引 言

1968 年, 前苏联科学院的 Letokhov^[1] 通过计算提出: 增益介质中存在随机光放大和光散射, 且由于扩散反馈有可能产生激光. 1994 年, 美国科学家 Lawandy 等^[2] 把 TiO₂ 悬浮在若丹明染料中, 用激光束抽运该溶液时发现了增益介质的多次散射, 从实验上验证了 Letokhov 的预言. 1999 年, 美国西北大学的 Cao 研究组^[3,4] 用 266 nm 的 Nd:YAG 激光器的四倍频光抽运到厚度为微米量级的 ZnO 半导体粉末薄层上, 发现有很多“颗粒状”的发光区域, 这些发光区域尺寸为 0.3—0.7 μm, 并在空间上呈随机分布. 他们还通过分析其辐射光的光子数分布证明了所观测到的随机介质的辐射光为激光. 扫描电子显微镜图像显示, ZnO 粉末颗粒尺寸在 100 nm 左右. 由于随机介质激光不需要外加光学谐振腔, 因此在应用上具有广阔的前景, 正如 Wiersma^[5] 指出: “这种微小的尺寸敲开了许多应用的大门”.

Cao 研究组^[6] 还在研究颗粒填充密度不同的随

机介质激光辐射时发现: 随着颗粒填充密度的增加, 发生激光辐射所需抽运光的能量越低, 即激光阈值越低. 实验装置是一个 1 cm × 1 cm × 3 cm 玻璃容器, 内盛满悬浮有尺寸约为 100 nm 的 ZnO 纳米颗粒的若丹明 640 染料溶液, 用波长为 532 nm 的锁模 Nd:YAG 激光器的倍频光抽运该混合溶液. 通过观测不同填充密度下的发射谱来分析无序介质的激光辐射与颗粒填充密度之间的关系. 实验表明: 当颗粒填充密度为 $3 \times 10^{11} \text{ cm}^{-3}$ 时, 抽运光强度超过 5 μJ, 才出现谱宽为 5 nm 的发射峰; 当颗粒填充密度增加到 $6 \times 10^{11} \text{ cm}^{-3}$ 时, 抽运光强度只要达到 2.25 μJ, 就出现了更多、更窄的发射峰; 当颗粒填充密度进一步增加到 $1 \times 10^{12} \text{ cm}^{-3}$ 时, 抽运光强度只需 1.1 μJ, 就出现了谱宽为 0.2 nm 的更尖锐的发射峰.

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^[7]、环形腔理论^[4,8-10]、环形波导理论^[11] 和准态模理论等^[12-15]. Cao 等^[4] 提出的环形腔理论认为: 在强散射、高增益的随机介质中, 光在颗粒之间多次散射可能会形成闭合环, 随机激光就是由于光在这些环形腔中相干

^{*} 国家自然科学基金(批准号: 10464002, 60768001)资助的课题.

[†] 通讯联系人. E-mail: lzdgroup@ncu.edu.cn

反馈而形成的. 这个理论定性地解释了光谱特性、空间分布、输出特性、临界体积等随机激光器的光学特性. 但这种随机形成的环形腔具有一定的不确定性, 难以定量描述随机介质激光特性. Apalkov 等^[11]对环形腔理论进行了改进, 提出了环形波导理论. 文献^[11]指出, 随机介质介电常量的随机涨落会导致环形波导的形成, 这种波导类似于光腔使光场在其中产生相干反馈, 从而形成激光振荡. 然而, 我们通过模拟光波的空间分布与介电常量涨落的关系时发现, 介质中介电常量涨落形成的腔与光场的空间分布并非完全一一对应, 因此环形波导理论在解释随机激光特性时还需要作一些补充. 我们认为, 随机介质激光可看作是随机介质与相匹配的抽运光相互作用的整体散射效应的结果^[16-18].

2. 二维随机介质的材料参数模拟

以 ZnO 粉末薄层为例, 此类二维随机介质可视为介电常量为 ϵ_a 的散射颗粒随机分布在介电常量

为 ϵ_b 的均匀的背景材料中. 为模拟此二维随机介质的相关参数, 散射颗粒的位置由随机函数产生. 若某一颗粒的中心位置用 (x, y) 表示, 则 $x = ia_0 + \alpha\eta_x$, $y = jb_0 + \beta\eta_y$, 其中 $i, j = 1, 2, 3, \dots$ 表示 x 方向和 y 方向上的颗粒序号, a_0 和 b_0 为 x 方向和 y 方向上相邻颗粒之间的平均间隔, η_x 和 η_y 为满足正态分布的随机数, α 和 β 为可调系数, 表示散射颗粒在 x 方向和 y 方向上的空间位置涨落的程度. 以 (x, y) 为中心, 具有一定形状和大小的颗粒可用其对应的函数 f 来描述, 则整个随机介质的介电常量分布可表示为

$$\epsilon(x', y') = \begin{cases} \epsilon_a & (x', y') \in f, \\ \epsilon_b & (x', y') \notin f. \end{cases}$$

取散射颗粒的介电常量 $\epsilon_a = 11.5$, 背景材料的介电常量 $\epsilon_b = 1$, 它们的磁导率分别取 $\mu_a = 1$ 和 $\mu_b = 1$, η_x 和 η_y 均为满足正态分布在 $[-0.5, 0.5]$ 范围内的随机变量, α 和 β 均取 0.5, 颗粒的形状是以圆形为主, 颗粒尺寸约为 100 nm.

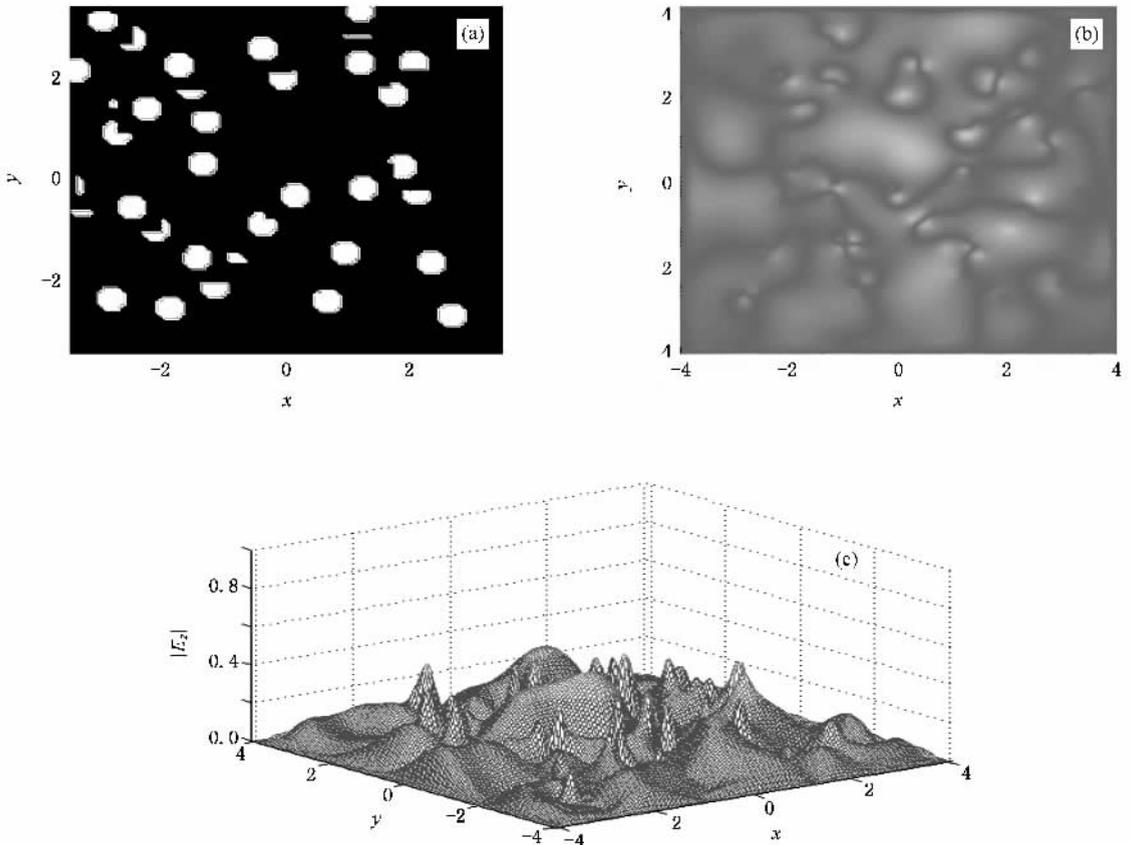


图1 填充率 $w = 0.17$ 的随机介质中颗粒分布和光场的空间分布 (a) 随机介质中散射颗粒分布 (b) 相应 $|E_z|$ 的空间分布二维图, 图中不同灰阶表示不同的 $|E_z|$ 值, 灰度越小对应的 $|E_z|$ 值越大 (c) $|E_z|$ 空间分布三维图

3. 不同颗粒密度的随机介质中光场的空间分布

由于时域有限差分 (FDTD) 法对 Maxwell 矢量方程直接离散, 在数值计算过程中保持了光波的相位关系, 可以反映光波的干涉特性, 因而在研究光波局域化方面显示了极大的优越性. 以下将采用 FDTD 法研究颗粒填充密度不同情况下随机介质中光场的空间分布.

在二维介质中, Maxwell 方程为

$$\begin{aligned} \nabla \times E(r, t) &= -\mu \frac{\partial H(r, t)}{\partial t}, \\ \nabla \times H(r, t) &= \epsilon(r) \frac{\partial E(r, t)}{\partial t}. \end{aligned} \quad (1)$$

若电磁场为 TE 模, 即 H 与 z 轴平行, 则电磁分量分别为 $(E_x, E_y, 0)$ $(0, 0, H_z)$, 此时 Maxwell 方程的分量形式为

$$\frac{\partial H_z}{\partial x} = \epsilon(r) \frac{\partial E_y}{\partial t},$$

$$\frac{\partial H_z}{\partial y} = \epsilon(r) \frac{\partial E_x}{\partial t},$$

$$\frac{\partial E_y}{\partial x} - \frac{\partial E_x}{\partial y} = \mu \frac{\partial H_z}{\partial t}. \quad (2)$$

若电磁场为 TM 模, 即 E 与 z 轴平行, 则电磁分量分别为 $(0, 0, E_z)$ $(H_x, H_y, 0)$, 此时 Maxwell 方程的分量形式为

$$\frac{\partial E_z}{\partial x} = \mu \frac{\partial H_y}{\partial t},$$

$$\frac{\partial E_z}{\partial y} = \mu \frac{\partial H_x}{\partial t}, \quad (3)$$

$$\frac{\partial H_y}{\partial x} - \frac{\partial H_x}{\partial y} = \epsilon(r) \frac{\partial E_z}{\partial t}.$$

取计算空间约为 $2000 \text{ nm} \times 2000 \text{ nm}$, 将计算空间网格化, 设在 x 轴和 y 轴上的空间步长分别是 Δx Δy , 时间步长为 Δt , 计算空间外围由完全匹配层 (PML) 吸收层包围. 取空间步长为 $\Delta x = \Delta y = 10 \text{ nm}$, 时间步长为 $\Delta t = \frac{1}{c} \left[\frac{1}{(\Delta x)^2} + \frac{1}{(\Delta y)^2} \right]^{-1/2} = 2.357 \times 10^{-16} \text{ s}$. 在尺寸为 $600 \text{ nm} \times 600 \text{ nm}$ 的介质中心区域引入一束中心频率为 $\nu_0 = 11.28 \times 10^{14} \text{ Hz}$ 的

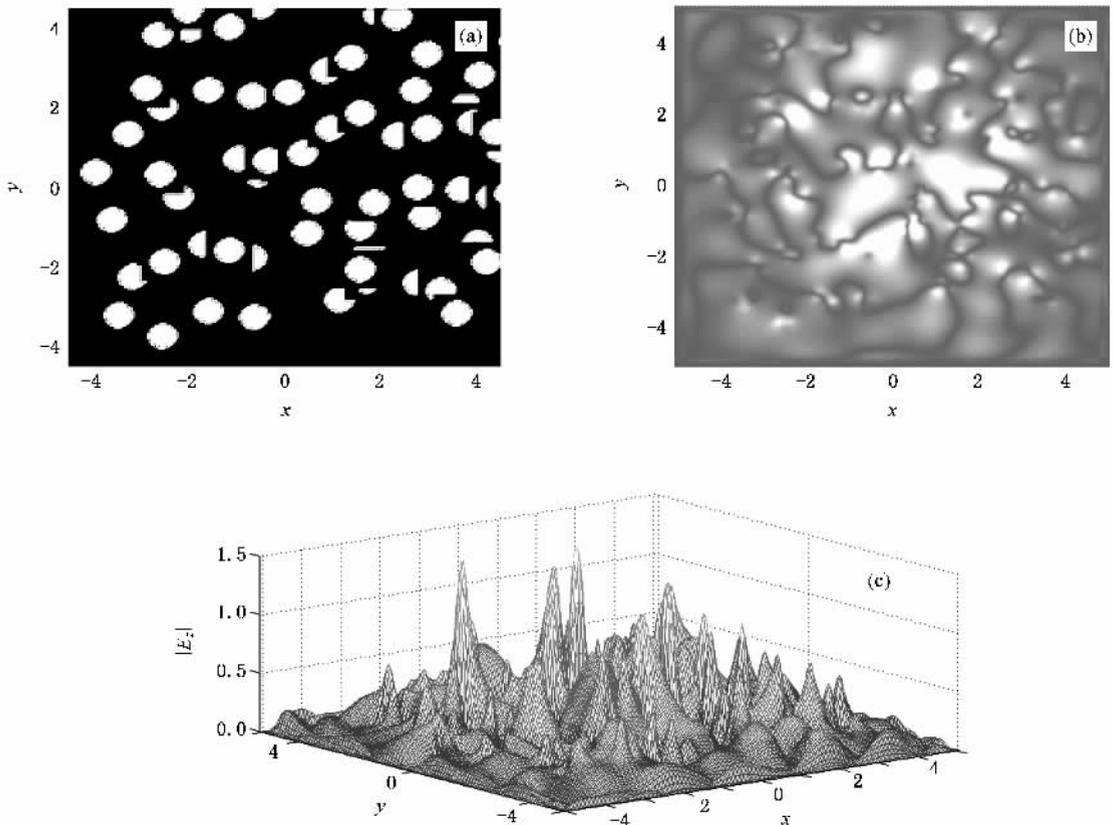


图2 填充率 $w = 0.28$ 的随机介质中颗粒分布和光场的空间分布 (a) 随机介质中散射颗粒分布 (b) 相应 $|E_z|$ 的空间分布二维图, 图中不同灰阶表示不同的 $|E_z|$ 值, 灰度越小对应的 $|E_z|$ 值越大 (c) $|E_z|$ 空间分布三维图

TM 模时域高斯脉冲光束

$$E = \cos\omega t \exp\left[-\left(\frac{t-t_0}{\tau}\right)^2\right],$$

并取 $\tau = 2.4 \times 10^{-15}$ s, $t_0 = 14.1 \times 10^{-16}$ s. 分别对 ZnO 颗粒填充率 $w = 0.17, 0.28, 0.43$ 的分布情况进行模拟, 经过 2500 步迭代计算, 结果如图 1—图 3 所示. 图 1 中的颗粒填充率 $w = 0.17$, 其中图 1(a) 为随机介质中散射颗粒的空间分布, 图 1(b) 为随机介质中光场的空间分布二维图, 图中灰阶表示光场的强弱, 灰度越小即越亮的区域光场强度越大, 图 1(c) 为随机介质中 $|E_z|$ 的空间分布三维图. 从图 1 可见, 在介质中出现了光场相对集中的一些小区域, 这些小区域与散射颗粒的空间分布有关. 图 2 中的颗粒填充率 $w = 0.28$, 与图 1 相比较可以看出, 图 2 中出现了更多更小的光场局域化小区域, 相应的光场强度增大, 空间局域化程度增强. 图 3 中的颗粒填充率 $w = 0.43$, 光场的局域小区域更多更小, 相应的光场强度更大, 空间局域化程度更强.

随机介质散射平均自由程依据下式计算:

$$l = \sqrt{pq/N},$$

其中 p 和 q 是空间 x 方向和 y 方向的边长, N 为全空间的粒子数. 经计算可得图 1、图 2 和图 3 所对应的散射平均自由程分别约为 385, 295 和 250 nm, 均与波长相当. 以上数值模拟结果表明: 当用同样的光束照射到颗粒填充密度不同的无序介质上, 介质中的光波(电场分量)表现出的局域化特征不同, 与颗粒填充率 w 明显相关. 当颗粒填充密度较小时, 出现了一些比较弱的强度峰, 存在局域化现象. 当颗粒填充密度增大时, 光场表现出更加明显的局域化, 出现了更多更高的强度峰; 当颗粒填充密度进一步增大时, 光波的局域化程度显著增强, 整个空间充满了局域化的小区域, 而且强度较大. 其次, 峰的位置与介质结构有一定的对应关系, 但不是机械地一一对应. 这一模拟结果不仅能直观地反映出散射颗粒在不同填充密度下光的局域化现象, 为 Cao 等发现的不同颗粒填充密度下的无序介质激光现象提供了合理的理论解释, 而且为无序介质整体相干散射产生激光的机理提供了强有力的依据.

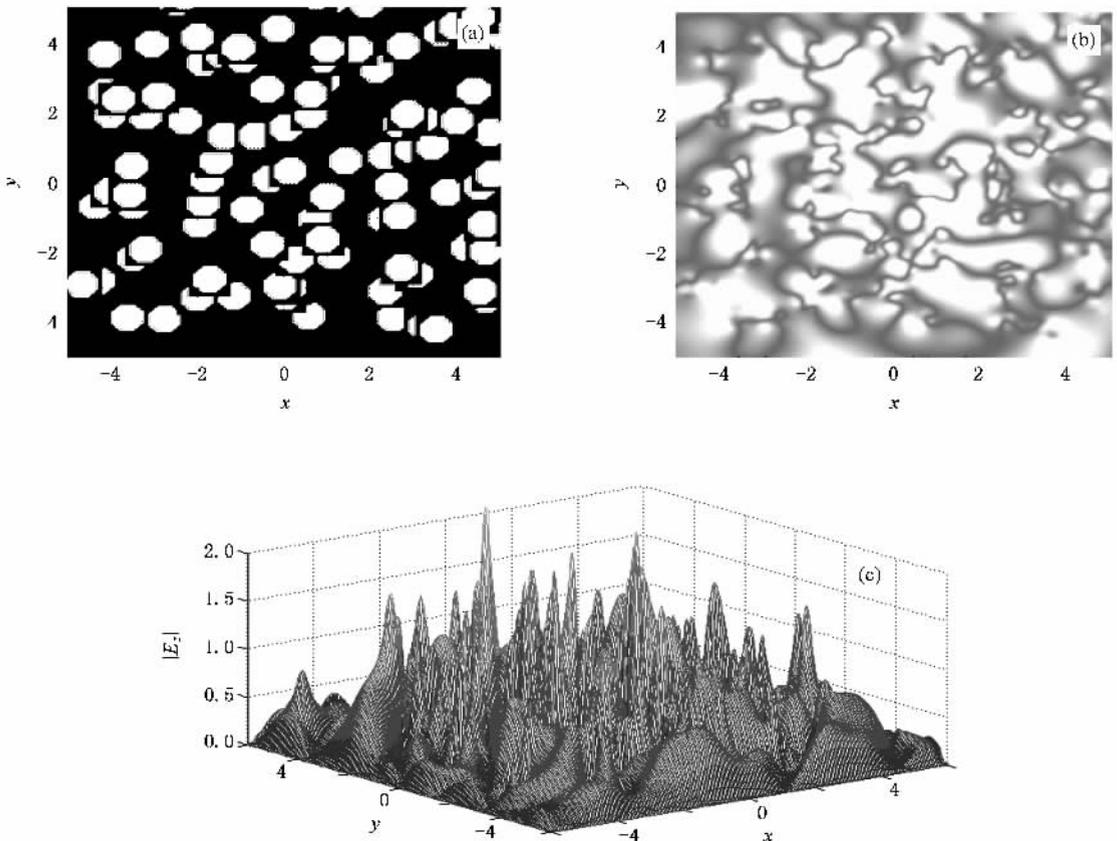


图3 填充率 $w = 0.43$ 的随机介质中颗粒分布和光场的空间分布 (a) 随机介质中散射颗粒分布 (b) 相应 $|E_z|$ 的空间分布二维图, 图中不同灰阶表示不同的 $|E_z|$ 值, 灰度越小对应的 $|E_z|$ 值越大 (c) $|E_z|$ 空间分布三维图

4. 结 论

本文用 FDTD 法研究了同一材质的颗粒在不同填充密度下的随机介质中的光局域化问题. 依据随机介质激光的实验参数, 模拟了颗粒填充密度不同的

随机介质中光场的空间分布. 结果表明: 当散射颗粒的散射平均自由程与波长相当时, 随机介质中的光场分布呈现局域化的特征, 而且随着颗粒填充密度增大, 光场的局域化程度增强. 因此, 在同样的抽运激励下, 颗粒填充密度越大的随机增益介质越容易产生激光辐射. 数值模拟结果与实验定性符合.

-
- [1] Letokhov V S 1968 *Sov. Phys. J. EPT* **26** 835
- [2] Lawandy N M, Balachandran R M, Gomes A S L, Sauvain E 1994 *Nature* **368** 436
- [3] Cao H, Zhao Y G, Ho S T, Seelig E W, Wang Q H, Chang R P H 1999 *Phys. Rev. Lett.* **82** 2278
- [4] Cao H, Xu J Y, Zhang D Z, Chang S H, Ho S T, Seelig E W, Liu X, Chang R P H 2000 *Phys. Rev. Lett.* **84** 5584
- [5] Wiersma D S 2000 *Nature* **406** 132
- [6] Cao H, Xu J Y, Chang H S, Ho S T 2000 *Phys. Rev. E* **61** 1985
- [7] Balachandran M, Lawandy N M, Moon J A 1997 *Opt. Lett.* **22** 319
- [8] Burin A L, Ratner M A, Cao H, Chang R P H 2001 *Phys. Rev. Lett.* **87** 215503
- [9] Ling Y, Cao H, Burin A L, Ratner M A, Liu X, Chang R P H 2001 *Phys. Rev. A* **64** 063808
- [10] Yao Z G, Zhang X Q, Shang H K, Teng X Y, Wang Y S, Huang S H 2005 *Chin. Phys.* **14** 1205
- [11] Apalkov V M, Raikh M E, Shapiro B 2002 *Phys. Rev. Lett.* **89** 016802
- [12] Soukoulis C M, Jiang X, Xu J Y 2002 *Phys. Rev. B* **65** R041103
- [13] Vanneste C, Sebbah P 2001 *Phys. Rev. Lett.* **87** 183903
- [14] Liu J S, Wang H 2004 *Acta Phys. Sin.* **53** 4224 (in Chinese) [刘劲松、王 宏 2004 物理学报 **53** 4224]
- [15] Liu J S, Liu H, Wang C 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 3116 (in Chinese) [刘劲松、刘 海、王 春 2005 物理学报 **54** 3116]
- [16] Xie Y M, Liu Z D 2005 *Phys. Lett. A* **341** 339
- [17] Xie Y M, Liu Z D 2005 *Chin. Phys. Lett.* **22** 2827
- [18] Wang H Q, Liu Z D 2006 *Acta Phys. Sin.* **55** 2281 (in Chinese) [王慧琴、刘正东 2006 物理学报 **55** 2281]

The spatial distribution of optical field in random media with different filling densities of the same material particles *

Wang Hui-Qin^{1 2)} Liu Zheng-Dong^{1 3) 4) †} Wang Bing³⁾

1 *School of Materials Science and Engineering, Nanchang University, Nanchang 330031, China*

2 *Physics Experiment Center, Nanchang University, Nanchang 330031, China*

3 *Institute of Modern Physics, Nanchang University, Nanchang 330031, China*

4 *Engineering Research Center for Nanotechnology, Nanchang University, Nanchang 330047, China*

(Received 6 May 2007 ; revised manuscript received 5 September 2007)

Abstract

The problem of light localization in two-dimensional random media with different filling densities of the same material particles is studied by use of the finite difference time domain method. Based on the experimental parameters of random media, the spatial distributions of optical field in the media with different filling densities of scattering particles are simulated. Results show that when the scattering mean free path is close to the wavelength, the optical fields are localized obviously in the random media. And with the particle filling density increasing, the localization becomes stronger. So with the same pump beam, it is easier to achieve laser radiation for random media with higher filling densities of scattering particles. The results agree with the experiments qualitatively.

Keywords : random laser, finite difference time domain, particle filling density, localization

PACC : 4225, 4260D

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 10464002, 60768001).

† Corresponding author. E-mail : lzdgroup@ncu.edu.cn