

二维随机介质中双波长辐射及模式竞争特性

樊 婷¹ 李 娜²

(¹ 佛山科学技术学院电子与信息工程学院, 广东 佛山 528000)
(² 佛山科学技术学院理学院, 广东 佛山 528000)

摘要 研究了二维随机介质中双色辐射特性以及模式竞争特性。基于随机激光的时域理论,建立了双波长随机激光辐射的理论模型。利用时域有限差分(FDTD)方法求解麦克斯韦方程与速率方程,采用傅里叶变换方式获得随机激光的发射谱,讨论了染料浓度、表面填充率以及散射颗粒半径对辐射光波的影响。结果表明,随着染料浓度的增大,短波长辐射光强度会降低而长波长辐射光强度会提高;表面填充率的增大会使两种波长的辐射光强度同时提高,并没有表现出偏向性,而散射颗粒半径对发射谱的影响则表现出明显的波长选择性。

关键词 光电子学;随机介质;双波长;模式竞争

中图分类号 O436 文献标识码 A doi: 10.3788/CJL201340.0806004

Characteristics of Dual-Wavelength Emission and Mode Competition in Two-Dimensional Random Medium

Fan Ting¹ Li Na²

(¹ School of Electronics and Information Engineering, Foshan University, Foshan, Guangdong 528000, China)
(² School of Science, Foshan University, Foshan, Guangdong 528000, China)

Abstract The characteristics of dual-color emission and mode competition in two-dimensional random medium are studied. Based on the time-dependent theory, a model for dual-wavelength random laser is established. The Maxwell equations and rate equations are combined and solved by using the finite different time domain (FDTD) method. Light emission spectrum is calculated by Fourier transform. The effects of dye concentration, surface filling-fraction and scatterer radius on random laser emission are discussed. Results show that the emission intensity of long wavelength increases while that of short wavelength decreases with the dye concentration raising. The surface filling-fraction increase the emission intensity and has the same effect on different wavelengths, while the effect of the scatterer radius on the emission spectrum is wavelength dependent.

Key words optoelectronics; random medium; dual-wavelength; mode competition

OCIS codes 290.5825; 140.3430; 290.4210

1 引 言

随机激光是由前苏联科学家 Lotokhov^[1]于1968年首次预言,在无序增益介质中可能存在的受激辐射现象。而真正引起激光物理领域科学家兴趣的是后来的两个有代表性的实验,一个是由 Lawandy 等^[2]于1994年利用脉冲激光激励掺杂染料和 TiO₂ 纳米颗粒胶体溶液所观测到的激光辐射现

象,另外一个是由美国西北大学 Cao 研究组^[3]于1999年在 ZnO 半导体粉末的受激发光实验中观测到的窄线宽的激光辐射现象^[3]。随后,随机激光辐射现象在学术界引起了广泛关注,并成为了该领域的研究热点,原因在于其特殊的物理机理和广泛的应用前景^[4]。随机激光的产生机制主要来源于光波在无序介质中的多重散射所形成的光子局域化过

收稿日期: 2013-01-28; 收到修改稿日期: 2013-04-02

作者简介: 樊 婷(1982—),女,博士,讲师,主要从事激光物理与发光材料等方面的研究。

E-mail: everting82@yahoo.com.cn

程,其发光机制的研究则经历了扩散方程理论^[5]、环形腔理论^[6]、环形波导理论^[7]以及时域理论^[8]等发展阶段。

在以往的实验中,研究人员通常都只考虑具有单一辐射波长的增益材料,例如 ZnO、GaAs 等。即使采用具有复杂跃迁能级的染料作为增益介质,都只考虑其中某两个能带间的受激辐射过程。最近,研究人员在实验中观察到染料随机激光辐射的双色发光现象^[9],以及双掺稀土的多波长随机激光发光现象^[10]。对于以染料为增益介质的随机激光实验中观察到的双色辐射现象,之前采用的是“单重态—三重态”理论进行解释^[11],后来 Vaveliuk 等^[12]提出用“单体—二聚体”理论,这些理论都是以扩散方程为基础来描述多波长辐射行为。这样的模型虽然可以成功解释染料的双色发光现象,但是却忽略了光场的相位关系以及干涉特性,从而使随机激光现象中基于相干性的许多性质被忽略或掩盖。然而,若要建立严格的多波长随机激光理论模型,必须采用时域理论中的麦克斯韦方程组来描述光场,并采取多电场耦合的方式来处理不同波长辐射光的传输以及受激辐射过程。本文基于随机激光的时域有限差分(FDTD)理论,建立适用于描述双波长随机激光辐射特性的理论模型,讨论了染料浓度、随机介质的表面填充率以及散射颗粒的半径对双波长随机激光辐射特性的影响。这不但是对随机激光时域理论的一个重要扩展,还将为随机激光作为一种新型的双色光源提供了有力的理论研究手段。

2 基本理论模型

本文将实际的三维系统简化为由均匀增益介质和散射颗粒组成的二维随机系统,如图 1 所示。半径为 r ,折射率为 n_2 的圆形散射颗粒随机分布在边长为 L ,折射率为 n_1 的均匀增益介质中。令 $n_1 = 1.4, n_2 = 2.5$,这与在 Rh6G 乙醇溶液中掺杂 TiO_2

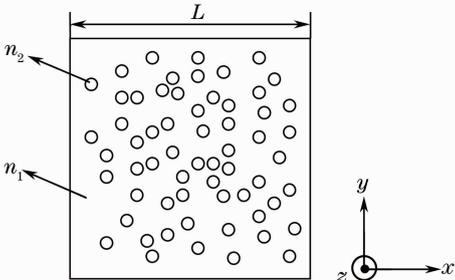


图 1 二维随机介质示意图

Fig. 1 Scheme of a two-dimensional random media

纳米颗粒的实验参数相对应。随机样品中的散射颗粒密度可以用表面填充率 Φ 来表征,定义为 $\Phi = N\pi r^2/L^2$,其中 N 为散射颗粒总数。

本文的理论模型是基于 Vaveliuk 等^[12]所提出的“单体—二聚体”理论建立的,其能级图参照文献^[12]给出,如图 2 所示。染料在乙醇溶液中会形成单体和二聚体两种物质,它们之间存在能量交换,这个能量交换除了是二次吸收效应之外,更重要的是单体的上能级粒子以无辐射跃迁的方式到达二聚体的上能级过程。

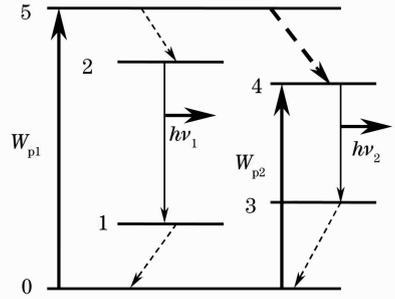


图 2 多能级系统示意图

Fig. 2 Scheme of a multi-energy level system

激励光以抽运速率 W_{p1} 将电子从基态能级 0 抽运到最高能级 5,而 W_{p2} 是将电子从基态能级 0 抽运到二聚体上能级 4 的速率。 W_{p1} 可以取一个定值,但 W_{p2} 应该写成 $W_{p2} = K_1 + K_2 E_1$ 的形式,其中 K_1 是外部抽运过程,与前面的 W_{p1} 应该有一个固定的比例,而 $K_2 E_1$ 则体现了二聚体对单体辐射光的二次吸收过程,因此应与其辐射光电场强度 E_1 成正比。在能级 5 上的电子有两种跃迁方式,一种是以无辐射跃迁的方式到达单体的上能级 2,另外一种是无辐射跃迁到二聚体的上能级 4。当单体和二聚体形成粒子数反转后将产生激光辐射,其对应的辐射光中心频率分别为 ν_1 和 ν_2 ,在麦克斯韦方程组中对应的电场强度分别是 E_1 和 E_2 。分别以 $1/\tau_{52}$ 和 $1/\tau_{54}$ 描述从能级 5 到能级 2 和 4 的跃迁几率,根据 Vaveliuk 等^[12]的实验结论,比例系数 $C = \tau_{52}/\tau_{54}$ 可以用来表征染料浓度的变化。令 $\tau_{43}, \tau_{30}, \tau_{21}, \tau_{10}$ 分别是能级 4、3、2、1 的寿命, $N_i(r, t)$ ($i = 0, 1, 2, 3, 4, 5$) 为各能级的粒子数密度,且均为时间和位置的函数。用于描述以上多能级系统的速率方程组如下所示

$$\frac{dN_5}{dt} = W_{p1} N_0 - \frac{N_5}{\tau_{52}} - \frac{N_5}{\tau_{54}}, \quad (1)$$

$$\frac{dN_2}{dt} = \frac{N_5}{\tau_{52}} - \frac{N_2}{\tau_{21}} + \frac{E_1}{h\nu_1} \cdot \frac{dP_1}{dt}, \quad (2)$$

$$\frac{dN_1}{dt} = \frac{N_2}{\tau_{21}} - \frac{N_1}{\tau_{10}} - \frac{E_1}{h\nu_1} \cdot \frac{dP_1}{dt}, \quad (3)$$

$$\frac{dN_4}{dt} = \frac{N_5}{\tau_{54}} - \frac{N_4}{\tau_{43}} + \frac{E_2}{h\nu_2} \cdot \frac{dP_2}{dt} + W_{p2} N_0, \quad (4)$$

$$\frac{dN_3}{dt} = \frac{N_4}{\tau_{43}} - \frac{N_3}{\tau_{30}} - \frac{E_2}{h\nu_2} \cdot \frac{dP_2}{dt}, \quad (5)$$

$$\frac{dN_0}{dt} = \frac{N_1}{\tau_{10}} + \frac{N_3}{\tau_{30}} - W_{p1} N_0 - W_{p2} N_0, \quad (6)$$

式中 E_1 和 E_2 分别为模型中短波长辐射与长波长辐射所对应的电场强度, P_1 和 P_2 为相应的极化强度密度, $(E_1/h\nu_1)dP_1/dt$ 表征了受激辐射跃迁速率^[8]。

讨论二维平面中电磁波的横磁(TM)模式, 辐射光的电场与磁场分量满足如下的麦克斯韦方程组:

$$\frac{\partial E_{iz}}{\partial y} = -\mu_0 \frac{\partial H_{ix}}{\partial t}, \quad (7)$$

$$\frac{\partial E_{iz}}{\partial x} = \mu_0 \frac{\partial H_{iy}}{\partial t}, \quad (8)$$

$$\epsilon_0 \epsilon_j \frac{\partial E_{iz}}{\partial t} + \frac{\partial P_{iz}}{\partial t} = \frac{\partial H_{iy}}{\partial x} - \frac{\partial H_{ix}}{\partial y}, \quad (9)$$

式中 ϵ_0 和 μ_0 分别是真空介电常数和真空磁导率; $\epsilon_j = n_j^2$ ($j = 1, 2$, 分别表示背景增益介质和散射颗粒的相对介电常数); $i = 1, 2$, 分别用于表示单体和二聚体所对应的光场参量; P_{iz} 为极化强度密度, 并满足方程^[8]

$$\frac{d^2 P_{iz}}{dt^2} + 2\pi\Delta\nu_i \frac{dP_{iz}}{dt} + 2\pi\nu_i^2 P_{iz} = \kappa_i \Delta N_i E_{iz}, \quad (10)$$

式中 $\Delta N_1 = N_1 - N_2$ 为能级 1 和 2 之间的粒子数密度差, $\Delta N_2 = N_3 - N_4$ 为能级 3 和 4 之间的粒子数密度差; $\Delta\nu_1 = 2\pi(1/\tau_{21} + 2/T_2)$ 和 $\Delta\nu_2 = 2\pi(1/\tau_{43} + 2/T_2)$ 分别为两种波长辐射光所对应的能级跃迁的谱线宽度; $\kappa_1 = 3\epsilon_0 c^3 / (2\pi\nu_1^2 \tau_{21})$ 和 $\kappa_2 = 3\epsilon_0 c^3 / (2\pi\nu_2^2 \tau_{43})$ 为与能级性质有关的常量, T_2 为原子的碰撞时间。

采用时域有限差分方法联立求解以上麦克斯韦方程组和速率方程组, 可以获得二维平面内电场强度 E_z 的时间演化过程, 对所得数据进行傅里叶变换, 即可获得辐射光的功率谱。为了表征此系统为开放系统, 边界条件采用完全匹配层(PML)方式。增益介质的参数值如下: $\tau_{21} = \tau_{43} = 1.0 \times 10^{-9}$ s, $\tau_{10} = \tau_{30} = 1.0 \times 10^{-11}$ s, $\tau_{52} = \tau_{54} = 1.0 \times 10^{-13}$ s, $T_2 = 2.0 \times 10^{-14}$ s, $\lambda_1 = 566$ nm, $\lambda_2 = 660$ nm, 与实验中所采用的 Rh6G 染料分子参数接近。计算过程中空间步长和时间步长分别为 $\Delta x = \Delta y = 10$ nm 和 $\Delta t = \Delta x / (2c) \approx 1.67 \times 10^{-17}$ s。

3 结果与分析

为了验证模型的正确性, 首先研究辐射光强度与染料浓度之间的关系, 然后讨论样品的表面填充率和散射颗粒半径对随机激光模式竞争的影响。

3.1 染料浓度

如前所述, 单体和二聚体在一定条件下可以产生受激辐射过程, 其辐射光的中心波长分别为 $\lambda_1 = 566$ nm 和 $\lambda_2 = 660$ nm。若干实验已证明, 染料浓度可以改变溶液中单体和二聚体的浓度比例^[9,13]。一般来说, 在浓度较低的情况下, 单体的比例较大, 因此在实验中往往只能观测到强度非常弱的长波长辐射; 随着染料浓度的增大, 二聚体的比例也随之提高, 对应的长波长辐射也逐渐增强。在一定浓度下, 单体和二聚体的浓度可达到相等水平。本文所提出的理论模型通过 $C = \tau_{52} / \tau_{54}$ 来体现出两种物质的比例关系, 因此改变参数 C 就相当于改变了染料的浓度, C 的取值越大相当于二聚体的比例越大, 对应于染料的浓度就越大。

数值计算的具体参数如下: 样品面积 $S = 4 \mu\text{m} \times 4 \mu\text{m}$, 散射颗粒半径 $r = 60$ nm, $N = 538$ ($\Phi = 40\%$), 抽运速率 $W_{p1} = 1.0 \times 10^{13}$ s⁻¹。分别选择 4 个不同的参数 C : $C_1 = 0.5$, $C_2 = 0.75$, $C_3 = 1.0$, $C_4 = 1.5$ 。图 3 给出了 4 种情况下辐射光强度的频谱图。

从图中可以看出, 随着染料浓度的增大, 也就是参数 C 的增大, 二聚体所对应的中心波长为 660 nm 的激光辐射逐渐占据着主导地位, 而单体所对应的短波长激光辐射被逐步压制。而且, 随着参数 C 的增大, 二聚体对应的激光辐射光强增加非常明显。Vaneliuk 等^[12] 利用倍频的 Nd:YAG 脉冲激光作为激励源, 对掺有 TiO₂ 米颗粒的不同浓度的染料溶液进行光致发光实验。结果表明, 随着染料溶液浓度的增大, 单体所对应的辐射光强逐渐减弱, 二聚体所对应的辐射光强逐渐增强。对于本文的计算结果, 虽然两个频谱区域光强的比例关系不能与实验结果完全吻合, 但是其变化趋势基本一致。而且, 在保持所有数值模拟条件不变的前提下对多种不同的随机构型进行研究。结果表明, 对于不同的随机构型, 两个频谱区域的光强变化趋势也基本一致, 只是不同的随机构型所对应的辐射光强度存在微小的偏差。综上所述, 本节的模拟结果与 Vaneliuk 等^[12] 实验结果的变化趋势基本一致, 这就在一定程度上证明了研究所建立的模型的正确性。

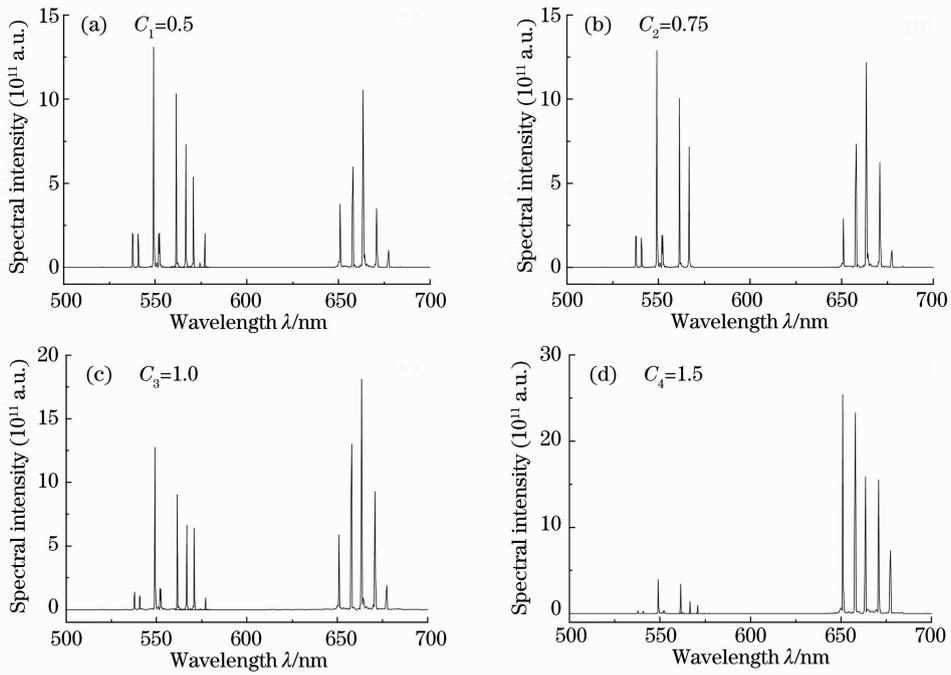


图 3 不同染料浓度下辐射光谱强度随波长的变化

Fig. 3 Spectral intensity versus wavelength at different dye concentrations

3.2 表面填充率

在二维的随机介质中,表面填充率是一个重要的系统参数,对光波的局域化程度起到决定性作用:当表面填充率超过一定值后,系统中的光子传播行为会从扩散态转化成局域态。下面将讨论样品的表面填充率对随机激光的两个辐射波段的光强有何影响。

在保持样品面积($S=4\ \mu\text{m}\times 4\ \mu\text{m}$)和散射颗粒半径($r=60\ \text{nm}$)不变的情况下选择 3 种不同的颗粒

数: $N_1=470$ 、 $N_2=538$ 、 $N_3=605$,对应的表面填充率分别为: $\Phi_1=35\%$ 、 $\Phi_2=40\%$ 、 $\Phi_3=45\%$ 。在计算中令抽运速率为恒定值: $W_{p1}=1\times 10^{13}\ \text{s}^{-1}$,并令 $\tau_{52}=\tau_{54}=10^{-13}\ \text{s}$,这样的设置对应于染料浓度较大的情形,单体和二聚体的浓度相等。图 4 给出了以上 3 种表面填充率下辐射光强度的频谱图。

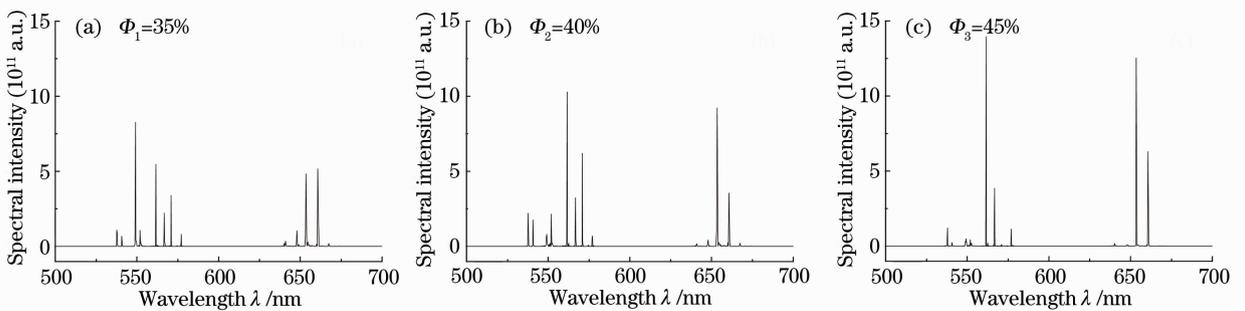


图 4 不同表面填充率下辐射光谱强度随波长的变化

Fig. 4 Spectral intensity versus wavelength at different surface filling-fractions

从图 4 可以看出,随着表面填充率的增加,辐射光谱有较大的变化。当表面填充率较低时($\Phi_1=35\%$),介质中的平均自由程比较长,散射颗粒对光子的散射作用较弱。虽然系统可以形成受激辐射,但是由于相干反馈的作用不强,两个波段范围的辐射光强度都较低。而且,从频谱图中还可以看出,两个波段所对应的辐射峰数量较多,而且每个辐射

峰的强度差别不大。当表面填充率增加到 $\Phi_2=40\%$ 时,由于散射颗粒对光子的多重散射效果增强,使得系统中相干反馈作用变得更加剧烈。这将导致辐射光的强度进一步增强,而且某些模式开始占据一定的优势,如图 4(b)所示。随着表面填充率的进一步增加($\Phi_3=45\%$),辐射光强度继续增大,频谱中只剩下了少数几个尖峰,如图 4(c)所示。

从两个波段的频谱细节上看,短波区域的辐射峰数量随着表面填充率的增加而迅速减少,两个主峰的强度比例也有很大变化;长波区域的两个强辐射峰的强度比例也发生了较大的变化。然而,从两个波段的辐射强度的总体变化趋势来看,随着表面填充率的增大,两个波段的辐射光强度都会增大,这是因为对于一定的散射颗粒半径和激励条件,样品中光波的多重散射随之加强,从而使受激辐射过程加剧所致。同时,长波区光强与短波区光强之比存在着缩小的趋势。然而,这样的变化趋势是微小的,也就是说表面填充率的变化对两个波段的辐射光强度影响只存在着微小的偏向性。上述结论表明,在实验中很难通过改变随机样品的表面填充率来控制两个波段辐射光的强度比例变化。

3.3 散射颗粒半径

光子局域化的形成来源于光子在介质中的多重散射,这其实就是大量光子与散射颗粒相互作用行为,颗粒的尺寸对散射过程必将有影响,并最终影响光波局域化的程度。更重要的一点是,根据瑞利散射理论,相同半径的散射颗粒对不同波长的光波的散射作用是不相同的。这也预示着在本文所讨论的理论模型中,散射颗粒的半径可能会改变不同波段辐射光的强度。下面将研究散射颗粒尺寸对不同波长辐射

光局域化程度的影响,而对于本模型则直接体现为不同波段受激辐射过程的竞争关系。为了消除表面填充率的影响,在选择不同尺寸散射颗粒的同时将保持随机样品的表面填充率不变。选择三种不同粒径的散射颗粒: $r_1=40\text{ nm}$ 、 $r_2=50\text{ nm}$ 、 $r_3=60\text{ nm}$,并保持随机介质的表面填充率 $\Phi=40\%$,样品面积为 $S=4\text{ }\mu\text{m}\times 4\text{ }\mu\text{m}$ 。在三种情况下采用相同的抽运速率: $W_{p1}=1.5\times 10^{13}\text{ s}^{-1}$,并令 $\tau_{52}=\tau_{54}=1.0\times 10^{-13}\text{ s}$,所获得的辐射光频谱如图5所示。

从图5可以看出,当颗粒半径 $r_1=40\text{ nm}$ 时,中心波长为 560 nm 和 650 nm 波段的辐射光谱强度几乎相等,这说明散射颗粒对两个波段的散射效果是相同的。当颗粒半径增大到 $r_2=50\text{ nm}$ 时,中心波长为 560 nm 的辐射光强有所下降,这说明 $r_2=50\text{ nm}$ 的散射颗粒对中心波长为 560 nm 的光波的散射效果减弱,颗粒半径对光波散射的波长选择性开始体现出来。当颗粒半径进一步增大到 $r_3=60\text{ nm}$ 时,中心波长为 560 nm 的辐射光强继续减小,而中心波长为 660 nm 的辐射光则明显增强。这一结果说明了颗粒半径对光波的散射效果具有波长选择性:随着散射颗粒半径的增大,其对光波的散射能力逐渐往长波长方向倾斜。

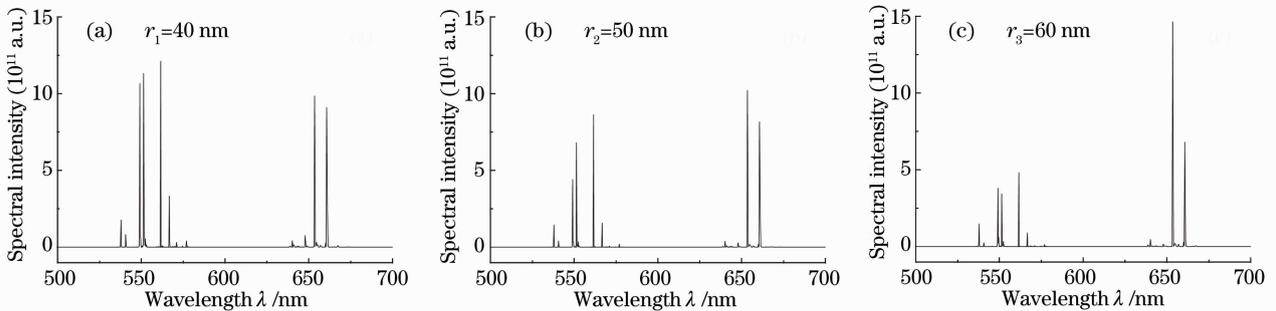


图5 不同颗粒半径的随机激光谱强度随波长的变化

Fig. 5 Spectral intensity versus wavelength at different scatterer radius

上述结论对控制染料随机激光的双色辐射有非常重要的意义。对于具有双色辐射特性的染料随机激光来说,两个波段的辐射光强一般只决定于染料浓度。然而,上述的数值模拟结果提供了一种新的控制双色辐射手段——通过改变散射颗粒的半径来控制不同波长辐射光的强度。由于这种方法在实验中比较容易实现,而光电技术的发展又常常要求制作强度可控的微型多波长有源器件,本节的结论为以上的技术要求提供了有力的理论基础。

4 结 论

基于随机激光时域理论,结合染料随机激光的实验现象,以及基于扩散方程的理论模型,建立了一套用于描述多能级随机激光的时域模型。该模型由于对辐射光场采用了麦克斯韦方程进行描述,因此比原有的扩散模型更能准确地描述辐射光的干涉行为。利用FDTD方法对模型进行数值求解,可以获得随机激光的辐射特性,并取得以下结论:1)染料浓度直接影响着单体和二聚体的比例,随着染料浓度的增加,溶液中产生了更多的二聚体,由二聚体产

生的长波长激光辐射强度增加,而由单体产生的短波长激光辐射强度下降。2)样品的表面填充率对散射强度有直接影响,并最终导致辐射光谱的变化。随着表面填充率的增加,两个波长的辐射光强度均有明显的提高,而且提高的幅度相同。这说明表面填充率对两个波段光波的多重散射效果几乎是等价的,也就是说表面填充率的影响不存在偏向性。3)随机样品中颗粒半径对光波的散射效果具有波长选择性:随着散射颗粒半径的增大,其对光波的散射能力逐渐偏向于长波长方向,这也为控制不同波长的辐射光强提供了一种实用化手段。

参 考 文 献

- 1 V S Letokhov. Generation of light by a scattering medium with negative resonance absorption[J]. *Sov Phys JETP*, 1968, 26(8): 835—840.
- 2 N M Lawandy, R M Balachandran, A S L Gomes, *et al.*. Laser action in strongly scattering media [J]. *Nature*, 1994, 368(6470): 436—438.
- 3 H Cao, Y G Zhao, S T Ho, *et al.*. Random laser action in semiconductor powder [J]. *Phys Rev Lett*, 1999, 82(11): 2278—2281.
- 4 D S Wiersma. The physics and applications of random lasers[J]. *Nature Physics*, 2008, 4(5): 359—367.
- 5 D S Wiersma, A Lagendijk. Light diffusion with gain and random lasers[J]. *Phys Rev E*, 1996, 54(4): 4256—4265.
- 6 A L Burin, M A Ratner, H Cao, *et al.*. Model for a random laser[J]. *Phys Rev Lett*, 2001, 87(21): 215503.
- 7 V M Apalkov, M E Raikh, B Shapiro. Random resonators and prelocalized modes in disordered dielectric films[J]. *Phys Rev Lett*, 2002, 89(1): 016802.
- 8 X Y Jiang, C M Soukoulis. Time dependent theory for random lasers[J]. *Phys Rev Lett*, 2000, 85(1): 70—73.
- 9 M A F Souza, A Lencina, P Vaveliuk. Controlling bichromatic emission in scattering gain media[J]. *Opt Lett*, 2006, 31(9): 1244—1246.
- 10 H Fujiwara, K Sasaki. Observation of upconversion lasing within a thulium-ion-doped glass powder film containing titanium dioxide particles[J]. *Jpn J Appl Phys*, 2004, 43(10B): 1337—1339.
- 11 S John, G Pang. Theory of lasing in a multi-scattering medium [J]. *Phys Rev A*, 1996, 54(4): 3642—3650.
- 12 P Vaveliuk, A M B Silva, P C Oliveira. Model for bichromatic laser emission from a laser dye with nanoparticle scatters[J]. *Phys Rev A*, 2003, 68(1): 013805.
- 13 W L Sha, C H Liu, R R Alfano. Spectral and temporal measurements of laser action of Rhodamine 640 dye in strongly scattering media[J]. *Opt Lett*, 1994, 19(23): 1922—1924.

栏目编辑:宋梅梅