

有散射微粒染料的光辐射*

程丙英 张玉苓 杨君慧 李英俊 李兆霖 胡 炜 张道中

(中国科学院物理研究所, 光物理实验室, 北京 100080)

摘 要 当染料溶液中存在强散射微粒时, 激光激励能产生强的窄光谱宽度的辐射。这种效应与增益区的长度有关。光子和散射颗粒的多次弹性散射可以增大有效增益长度。

关键词 染料, 光辐射, 散射微粒。

1 引 言

人们通常希望激光介质都是光学均匀的, 散射损耗尽可能小。但是最近 Lawandy 等人在激光激励的罗丹明染料与具有高折射率的微米尺寸的 TiO_2 的悬浮液中观察到强的超辐射^[1], Sha 等人也系统地研究了受激辐射的阈值与染料及散射微粒浓度的关系^[2], Zyuzin 从理论上进行了初步的讨论^[3]。这些工作打开了一个新的领域: 存在强散射颗粒的增益介质中的受激辐射。它不但对探索新的激光介质和新的光电器件十分有用, 同时对研究光子定域效应也极有意义。至今, 这种辐射产生的原因仍然不很清楚。

作者研究了在两种几何形式的激光激励下 Rh640 染料与 TiO_2 或 SrTiO_3 的悬浮液的光辐射特性。结果表明, 介质中的增益长度对强辐射的出现起重要作用, 因强散射颗粒的存在而出现的光子多次弹性散射能增加有效增益长度。微米颗粒的绝对尺寸和它的表面形状似乎并不是关键。

2 实 验

实验装置类似于一个没有共振腔的染料激光器。泵浦光是脉宽为 8 ns、重复率为每秒 5 次的倍频 YAG 激光。为了考察介质增益长度与光辐射的关系, 532 nm 的激光束以两种不同的聚焦方式进入装有 Rh640 甲醇溶液和散射微粒的样品池。样品池的两个侧面互不平行, 以防止光在它们之间的共振。第一种方式是用球面透镜, 焦点是一个直径为 2 mm 左右的圆点。第二种是先扩展光束再用柱面透镜聚焦, 产生一条 2 cm 长的焦线。这两种方法使样品池中染料的增益长度有 10 倍的差别。在点聚焦时, 激光束以不同的角度从前表面射入, 接收向前方发出的光。线聚焦下, 探测器放在样品池的侧面, 探测经过 2 cm 增益区的光。从样品池出来的光经透镜会聚后进入一个光栅光谱仪, 其出射信号由光电倍增管接收及 Boxcar 平均器处

* 国家自然科学基金资助项目。

收稿日期: 1995 年 2 月 20 日

理后进入计算机。计算机同时也起控制实验的作用。

实验中使用了三种散射颗粒，它们是平均直径为 $1\ \mu\text{m}$ 的 TiO_2 颗粒、杂乱的 TiO_2 粉末及有较大尺寸分布(从 1 到几个微米)的 SrTiO_3 颗粒。在可见光波段这两种材料的折射率在 2.5~2.7 左右，因此它们在染料溶液中的相对折射率在 2 附近。这使得光子与它们的弹性碰撞截面较大，即光子的弹性碰撞平均自由程较短。因为 TiO_2 及 SrTiO_3 的比重都远大于 1，在重力作用下沉淀是很明显的。对 TiO_2 粉末，结团现象也相当严重。为了消除这些效应，实验前必须用超声波发生器振动很长时间，以便得到颗粒均匀分布的悬浮液。

3 主要结果

在低浓度($\sim 10^{-4}\text{M}$ ，相应于普通染料激光器的浓度)和高浓度($\sim 10^{-3}\text{M}$)两种溶液里测量了不同激励方式下的光辐射。

2.1 浓度为 $5 \times 10^{-4}\text{M}$ 时的光辐射

在激光能量为 $1\sim 30\ \text{mJ}$ 范围内，无论是否有散射颗粒，点激发只能产生谱宽 $30\ \text{nm}$ 的荧光。对线激发，只要激光能量大于 $1\ \text{mJ}$ ，在沿焦线的方向上看到一亮点。其谱宽为 $4\ \text{nm}$ ，发散度为 $0.1\ \text{rad}$ 。当把密度为 $10^9\ \text{cm}^{-3}$ 的 TiO_2 微粒加入染料溶液，亮点消失，谱宽大大展宽。同时光辐射强度下降了近两个量级，如图 1 所示。由于样品池的两个侧面互不平行，因此，不可能存在由池壁反射引起的共振。为了确认散射微粒的作用，两个小时后再重复实验，这时由于颗粒的沉淀，样品池的上半部分 TiO_2 的密度很小。当把焦线打在这里，又得到了 $4\ \text{nm}$ 谱宽的定向光。

2.2 浓度为 $3.5\sim 5 \times 10^{-3}\text{M}$ 时的光辐射

在点激发下纯的染料溶液只能发出普通荧光。

但当加入 $10^9\ \text{cm}^{-3}$ 的 TiO_2 微粒后，只要激光能量大于 $1\ \text{mJ}$ ，辐射就成为谱宽 $7\ \text{nm}$ 并在样品池前方几乎呈各向同性分布的强辐射，如图 2 所示。增加 TiO_2 的密度几乎不改变辐射光谱的强度分布，只是辐射谱的峰值向短波方向稍微有些移动。而加大入射激光能量，辐射光的强度有相当大的提高。除了平均直径 $1\ \mu\text{m}$ 的 TiO_2 外，还分别在染料溶液中放入了杂乱的 TiO_2 粉末和直径不均匀的 SrTiO_3 颗粒。在相近的颗粒密度及激光能量下，都得到了类似的结果。

在线激发下，这种浓度的溶液，不管是否含有散射颗粒，辐射光的谱宽总维持在 $7\ \text{nm}$ 左右。

为了搞清含有 TiO_2 颗粒的染料溶液在线激发时是否会有增益，把一块衍射光栅放在样品池的侧面并让它的一级衍射准确地再通过激发区域，就象调节通常的染料激光器那样。这时在光谱上有两个峰，一个在 $619\ \text{nm}$ 附近，与没有光栅时一样。另一个谱宽极窄，位于 $615\ \text{nm}$ 。如图 3 所示。转动光栅的角度，窄峰的位置也随之改变。这个结果表示，尽管所用的染

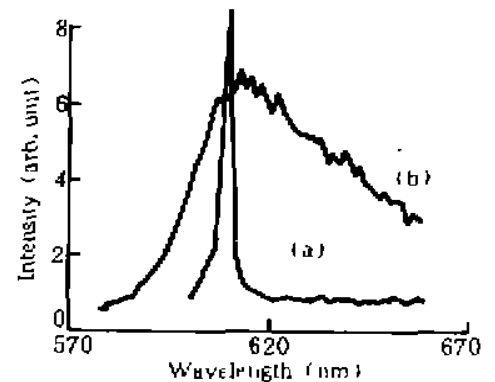


Fig. 1 Light emission under line excitation of $5 \cdot 10^{-4}\text{M}$ Rh. 640. a, pure dye solution, b, with added TiO_2 particles of $10^9\ \text{cm}^{-3}$ in density and $1\ \mu\text{m}$ in dia. The intensity of curve b is amplified by two orders of magnitude

料浓度是普通染料激光器的近 10 倍，但粒子数反转似乎也存在。

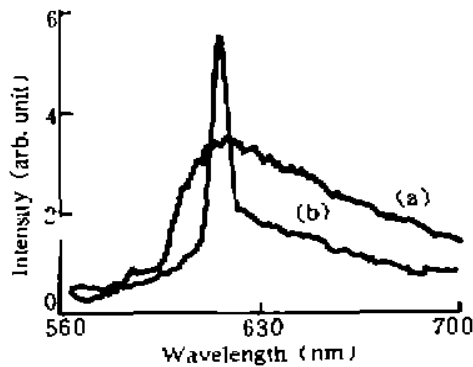


Fig. 2 Light emission under point excitation of 5×10^{-5} M Rh. 640. a: pure dye solution, b: with added TiO_2 particles of 10^9 cm^{-3} in density and $1 \mu\text{m}$ in dia

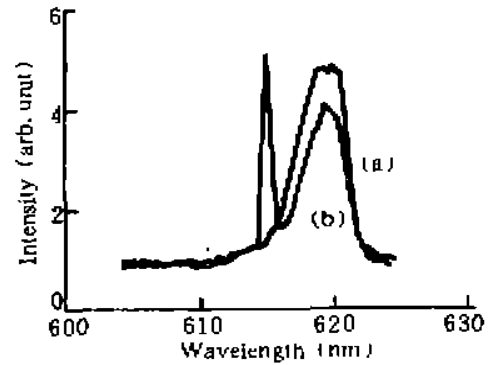


Fig. 3 Light emission under line excitation of a suspension consisting of $3.5 \cdot 10^{-5}$ M Rh. 640 and a small amount TiO_2 particles. a: without and b: with an additional grating

4 讨 论

在染料激光器中，染料浓度有一定的范围。浓度太低时，增益太小不能补偿各类损耗；浓度太高，出现其它损耗机制，同时泵浦光的穿透深度又很小，使得总的增益仍然太小。在现在的低浓度实验中染料浓度与激光器的工作浓度相当。因此，在纯染料溶液时，只要增益长度足够，受激辐射仍是可能的，因此在线激发下看到光谱分布变窄的效应，它出现在一个特别的方向上。而当加入散射颗粒后光子与颗粒的多次弹性散射使光子行进方向不断改变，无法在某一特定的方向上得到足以克服损耗的增益。这样，无论在点还是线激发下都没有受激辐射的可能，光辐射将呈现出普通荧光的性质。

当染料浓度较高时，只要泵浦激光足够强，增益系数就高。在线激发纯染料溶液时，尽管激发深度很小，但沿聚焦线方向受激辐射仍有可能不断增强。如用点激发，由于激发区域太小加上深度又很小，在所有方向上都不可能得到足以补偿损耗的增益。加入散射微粒后，多次弹性散射使光子在原来很小的激发区域内来回运动，这就相当在各个方向上使有效增益长度变长。实验上观察到的就是向前方发出几乎是各向同性的辐射。这里起主要作用的只是增益区域的长短，即只要光子弹性散射的次数足够多。这个次数主要取决于光子弹性散射的截面和散射颗粒的密度。而散射截面是由颗粒与周围介质的折射率之比决定的。在以往的用聚苯乙烯微米小球的实验中，并未看到此类超辐射的出现^[4]。因此，只要散射颗粒的折射率高并且尺寸在微米量级就会有效果，与颗粒的种类及其形状的关系应该不密切。

本文没有涉及到多次弹性散射波之间的干涉，即光子定域效应所起的作用。在一维情况下的光子定域效应已经有了理论探讨^[5]。三维时的效应可以通过测量光在含有散射颗粒的增益介质中的相干背散射得到。

参 考 文 献

- [1] N. M. Lawandy, R. M. Balachandran, A. S. L. Gomes *et al.*, Laser action in strongly scattering media. *Nature*, 1994, **368**(6470): 436~438
- [2] W. L. Sha, C. H. Liu, R. R. Alfano, Spectral and temporal measurement of laser action of rhodamine 640 dye in strongly scattering media. *Opt. Lett.*, 1994, **19**(23): 1922~1924

- [3] A. Yu. Zyuzin, Weak localization in back scattering from a amplifying medium. *Europhys. Lett.*, 1994, **26**(7) : 517~520
- [4] J. Martorell, N. M. Lawandy, Observation of inhibited spontaneous emission in a periodic dielectric structure. *Phys. Rev. Lett.*, 1990, **65**(15) : 1877~1880
- [5] P. Prodran, N. Kumar, Localization of light in coherent amplifying random media. *Phys. Rev. (B)*, 1994, **50** (13) : 9644~9647

Light Emission in a Dye Solution with Scatterers

Cheng Bingying Zhang Yuling Yang Junhui Li Yingjun
Li Zhaolin Hu Wei Zhang Daozhong

(*Optical Physics Laboratory, Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100080*)

(Received 20 February 1995)

Abstract When a suspension of dye with strongly scattering media is excited, the emission exhibits a property of narrow spectral bandwidth. This effect depends on the gain length in the suspension. The multiple elastic scattering of photon can effectively enhance the gain length.

Key words dye, light emission, microscopic scatterers.