

极弱散射结构中的随机激光器

刘大禾^{1,2} 石锦卫¹ 陈淑静¹ 翟天瑞³ 孔祥昱¹ 王兆娜¹

¹ 北京师范大学物理系应用光学北京市重点实验室, 北京 100875
² 南昌航空大学无损检测技术教育部重点实验室, 江南 南昌 330063
³ 北京工业大学应用数理学院, 北京 100124

摘要 提出了一种基于空间散斑的极弱散射随机激光系统,并用该系统在不同抽运条件下分别实现了相干反馈输出和非相干反馈输出。结果表明,两种反馈机制存在内在的联系。提出了随机腔耦合的概念,对弱散射随机激光器的模式特性给出了合理的解释。

关键词 激光器;随机激光;弱散射结构;腔耦合

中图分类号 TN242 **文献标识码** A **doi**: 10.3788/AOS201131.0900127

Random Laser in Weakly Scattering Structures

Liu Dahe^{1,2} Shi Jinwei¹ Chen Shujing¹ Zhai Tianrui³ Kong Xiangyu¹ Wang Zhaona¹

¹ Beijing Municipal Key Laboratory of Applied Optics, Department of Physics, Beijing Normal University, Beijing 100875, China

² Key Laboratory of Nondestructive Test, Ministry of Education, Nanchang Hangkong University, Nanchang, Jiangxi 330063, China

³ College of Applied Sciences, Beijing University of Technology, Beijing 100124, China

Abstract A random laser in weakly scattering structure formed by spatial speckle is investigated. Both phenomena induced by coherent feedback and intensity feedback are observed in the same system. The result shows that two kinds of feedback are related, but independent of each other. A physical mechanism of cavities coupling is proposed based on experimental investigations. The mode characteristics of weakly scattering random laser can be well explained through this mechanism.

Key words lasers; random laser; weakly scattering structure; cavities coupling

OCIS codes 140.3600; 140.3945; 140.4780

1 引 言

随机激光器是近年来激光研究领域内的一个重要进展。它突破了激光器中必须依靠谐振腔进行反馈的传统,而由无序结构中的随机散射提供反馈,从而获得激光输出。1966年, Ambartsumyan 等^[1]提出了随机激光的理论。这一理论预言在 26 年后被 Lawandy 等^[2]用实验证明。自此以后,在随机介质的研究领域,人们多次发现了高强度的受激辐射^[2~10]。人们把这种高度无序介质中的受激辐射所构成的激光器称为随机激光器。随机介质中的受激辐射有着深刻的物理意义和丰富的物理现象,其

受激辐射产生的机理至今仍没有很好的理论解释。因此,随机激光器成为当今物理学界的一个研究热点。

研究初期,人们认为无序介质产生随机激光的机理与传统的腔式激光器的出光原理类似,是由于随机分布的微粒对光产生强散射,形成光子局域所造成的。随着实验研究的深入,研究者们发现由弱散射微粒所构成的无序系统在远离 Anderson 局域的情况下也能产生随机激光,并且各种弱散射介质(共轭聚合物薄膜、蛋白石和人体组织等)构成的随机激光器在实验上相继被实现^[11~17]。理论研究方

收稿日期: 2011-07-12; 收到修改稿日期: 2011-08-01

基金项目: 国家自然科学基金(11074024)资助课题。

作者简介: 刘大禾(1948—), 教授, 主要从事光散射和光电子等方面的研究。E-mail: dhliu@bnu.edu.cn

面,随机激光器尤其是弱散射系统构成的随机激光器的出光机理一直是激光研究领域的热点。然而,随机激光的产生机理至今仍是一个尚待解决的问题。最近,Türeci 等^[18]提出了一种新的理论,这一理论既可解释传统激光器,也可解释随机激光器。

通常,随机激光器被分为场反馈随机激光器和强度反馈随机激光器^[9,10]。前者对相位敏感,又称相干反馈。后者对相位不敏感,又称非相干反馈。这两种反馈类型的随机激光器,既可以在强散射介质中实现^[9,10,19,20],也可以在弱散射介质中实现^[11~16]。在强散射介质中,随机激光模式与局域模一一对应。而在弱散射介质中,随机激光的机理及模式特性仍不清楚,需要进一步的深入研究^[21~24]。我国在这一领域到的研究也已起步,并在强散射系统的工作中取得了进展^[25,26]。

本文总结了本课题组最近在弱散射随机激光领域研究的一些工作进展。主要分为两部分:1)提出了一种新的基于空间散斑的极弱散射随机激光系统,并用该系统在不同抽运条件下分别实现了相干反馈输出和非相干反馈输出,结果表明,两种反馈机制存在内在的联系;2)提出了随机腔耦合的概念,对弱散射随机激光器的模式特性给出了合理的解释^[27]。

2 基于空间散斑的弱散射随机激光器

2.1 实 验

图 1(a)为实验光路。用一块毛玻璃产生空间散斑,并引入一束参考光与散斑光进行干涉,干涉图样记录在全息干板上。全息记录介质为重铬酸盐明胶(DCG),记录介质厚度为 $36\ \mu\text{m}$ 。将曝光的 DCG 干板置于 $20\ ^\circ\text{C}$ 流水中冲洗 2 h,进行显影。显影后,将 DCG 干板浸泡于异丙醇脱水。脱水过程为三步:1)50%异丙醇 30 min;2)75%异丙醇 30 min;3)100%异丙醇且含有浓度为 $C_{R0} = 7 \times 10^{-3}\ \text{mol/L}$ 若丹明 6G(R6G)溶液 2 h。脱水后,将干板置于 $100\ ^\circ\text{C}$ 烘箱中烘干。由此制成样品。

众所周知,空间散斑具有无序结构,可产生随机散射。图 1(b),(c)为本课题组制作的散斑结构的显微镜照片。可以看到,散斑的平均尺寸为 $1\ \mu\text{m}$,散斑点的密度约为 $10^9/\text{cm}^3$ 。通过测量样品的透射率,得到散斑结构的平均自由程 $l^* > 80\ \mu\text{m}$ (在 $550 \sim 600\ \text{nm}$ 范围内),即平均自由程大于样品厚度。这表明,样品为弱散射结构。

2.2 实验结果及讨论

测量了掺入若丹明染料的随机结构样品的光致

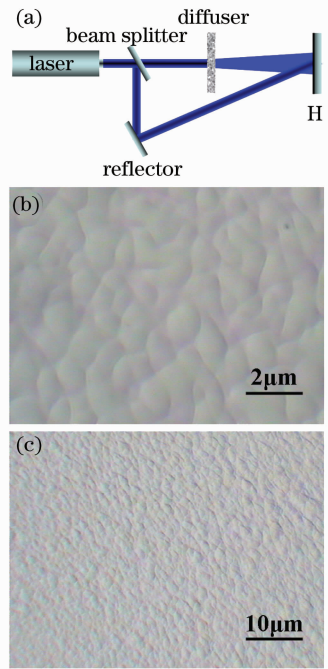


图 1 (a)散斑无序结构的制作光路;(b),(c)散斑无序结构的显微镜照片

Fig. 1 (a) Setup geometry of the disordered structure formed by speckle; (b), (c) microscopic images of the disordered structure formed by speckle

发光(PL)谱。图 2(a)为测量装置图,分别用皮秒和纳秒脉冲 YAG 激光器作为抽运光源,两台激光器的工作波长均为 $532\ \text{nm}$,重复频率为 $10\ \text{Hz}$ 。纳秒激光器的脉宽为 $8\ \text{ns}$,最大单脉冲能量为 $500\ \text{mJ}$,光斑直径为 $13\ \text{mm}$;皮秒激光器的脉宽为 $30\ \text{ps}$,最大单脉冲能量为 $40\ \text{mJ}$,光斑直径为 $3\ \text{mm}$ 。探测器为光纤探头光谱仪。探头尽可能靠近样品以收集更多的辐射能量。本课题组制作的散斑结构为准二维扩散系统^[27,28]。样品放置在旋转台上用以改变散斑结构相对于抽运光束的空间方位(用图中 θ 角表示),这可能导致辐射波长和出射峰数目的变化。图 2(b)为用皮秒激光抽运情况下, $\theta = 25^\circ$,抽运率约 $120\ \text{MW}/\text{mm}^2$ 时的出射光谱。这时的阈值约为 $50\ \text{MW}/\text{mm}^2$ 。可以看到,在 R6G 的增益范围内有多个激发模,其宽度为 $0.4\ \text{nm}$ 。这是一种典型的相干反馈随机激光辐射^[24]。这与文献[13,17]中报导的弱散射系统中的现象是一致的。产生这种现象的原因仍可用文献[21,23]的理论来解释。

然而,当用纳秒激光抽运同一样品时,出现了不同的现象。图 2(c)为纳秒激光抽运下, $\theta = 30^\circ$ 时,抽运功率在略高于阈值 ($66\ \text{kW}/\text{mm}^2$) 及远高于阈值 ($320\ \text{kW}/\text{mm}^2$) 的出射光谱。出射光中,只有一个

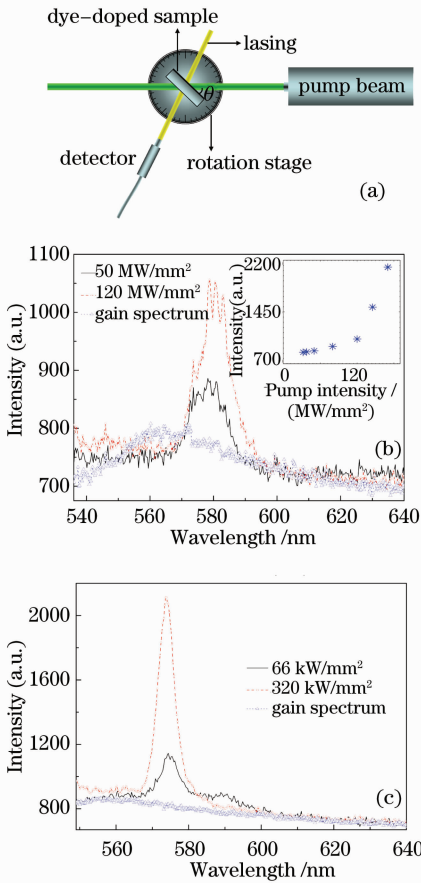


图 2 (a)随机激光测量装置示意图;(b)皮秒激光抽运 $\theta=25^\circ$ 时的出射光谱;(c)纳秒激光抽运 $\theta=30^\circ$ 时的出射光谱
Fig. 2 (a) Setup for measuring random lasing; (b) emission spectrum pumped by picosecond laser at $\theta=25^\circ$; (c) emission spectrum pumped by nanosecond laser at $\theta=30^\circ$

占统治地位的峰。用高斯函数和洛伦兹函数分别对该峰进行拟合,结果表明,该峰与高斯线型更接近[见图 3(a)]。其原因可理解为,根据中心极限定理,不同尺寸、间隔及形状散斑产生的大量随机散射过程可用高斯函数描述。图 3(b)为 $\theta=30^\circ$ 时,实测的不同抽运功率下的出射光谱。出射光中只有一个峰占主导地位,其波长为 574 nm,宽度约为 7 nm。出射光的抽运阈值约为 40 kW/mm²,这个值远低于皮秒激光抽运情况下的阈值 50 MW/mm²。当抽运功率达到 66 kW/mm² 时,激光的辐射特性已十分明显。

本课题组制作的散斑系统具有准二维的薄膜形状,而不是理想的各向同性结构。因此,辐射峰的特性与抽运光束的方向有关。在某些方向上,可以观察到两个峰。图 4(a)给出了用纳秒激光抽运情况下不同抽运功率时的出射光谱的测量结果。可以看到有两个峰分别位于在 570 和 590 nm 处,590 nm 处

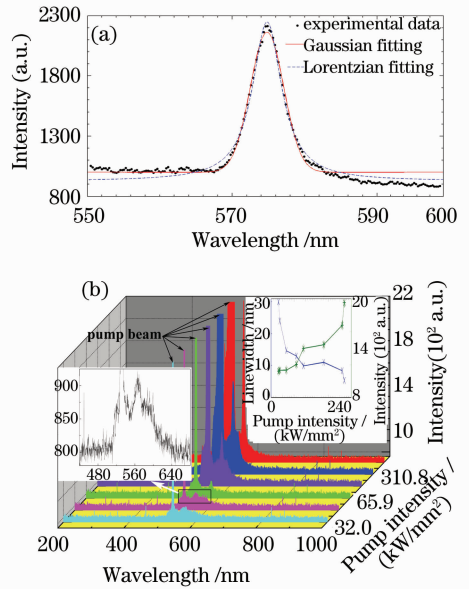


图 3 (a)用高斯函数和洛伦兹函数拟合的出射峰;(b) $\theta=30^\circ$ 时,不同抽运能量下的实测出射光谱
Fig. 3 (a) Gaussian- and Lorentzian-function-fitted emission peak; (b) measured emission spectra at different pump energies in the case of $\theta=30^\circ$

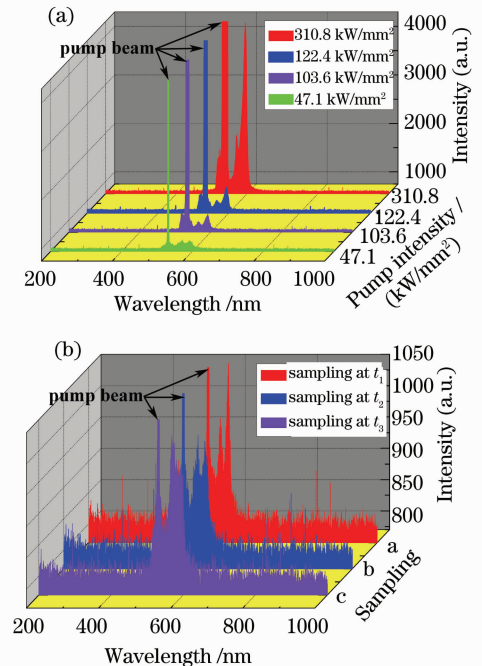


图 4 (a) $\theta=18^\circ$ 时,不同抽运能量下的实测出射光谱;(b) $\theta=18^\circ$ 时,阈值附近两个出射峰的竞争情况
Fig. 4 (a) Measured emission spectra at different pump energies in the case of $\theta=18^\circ$; (b) competition of two peaks around the threshold in the case of $\theta=18^\circ$

的峰明显高于 570 nm 处的峰,且当抽运功率足够强时成为占主导地位的模。而在阈值附件,这两个模相互竞争[见图 4(b)]。这与传统激光器中的模竞争有相似之处。

还可以发现,随着纳秒激光抽运功率的增加,输出峰的线宽由 30 nm 变为 5 nm[见图 3(b)中插图],这显示出非相干反馈(强度反馈)系统的特点^[24]。通常,在随机散射介质中,当光子的平均自由程远小于介质的尺度且大于光波长时,强度反馈对应于随机介质中光子的扩散运动^[9,10]。这个过程可用均匀和线性增益中光子能量密度的扩散方程来描述^[1,9,10]。显然,前面讨论的弱散射系统不属于这种情况,因为平均自由程大于样品的厚度。本课题组的实验结果显示,通过选择合适的抽运源,非相干反馈的现象也可以在弱散射结构实现。另外,在实验中,若抽运源为纳秒激光,则无论抽运能量是高还是低,都未能观察到相干反馈的现象。反之,若抽运源为皮秒激光,则无论抽运能量是高还是低,都未能观察到非相干反馈的现象。通过改变增益介质中的总散射来实现相干反馈和非相干反馈之间的相互转换已有报导^[9,29]。而本课题组的工作表明,这种转换可以在同一个样品中通过改变抽运源的脉冲宽度来实现。

这个现象可以解释如下:对于纳秒激光抽运的情况,在一个抽运脉冲周期内光传播的距离约为数米,这意味着光的散射次数非常多,即具有足够长的相互作用长度。因此,模竞争已经完成,并形成一个占主导地位的模。这就是只要抽运光足够强,出射光中只有一个模占据主导地位的原因。而对于皮秒激光抽运的情况,在一个抽运脉冲周期内光传播的距离仅为几个厘米,这意味着有效的相互作用长度极短,即使抽运能量很高,模竞争也无法完成,从而使出射光有多个模。另外,由于散射的次数非常少,只有足够高的抽运能量才能保证激光振荡的建立。这就导致了皮秒激光抽运时的高阈值现象。

系统产生的另一个有趣的现象是,随机激光出射波长的调谐可通过温度变化而实现。图 5 给出了基于空间散斑的随机激光器在不同温度时的出射光谱。可以清楚看到,随着温度的升高出射峰向长波方向移动。当温度改变时,只要辐射频率在增益介质的增益范围内激光振荡就可以维持。事实上,液晶随机激光器中温度变化的作用已经有过报道,但它只是简单地用于随机激光器的开和关^[7]。而在我们的系统中,可以真正实现波长调谐。这中调谐作

用产生的原因是,当温度改变时,相邻散斑之间的距离会改变,即光程改变,这会导致有效作用长度的变化,从而使出射波长改变。

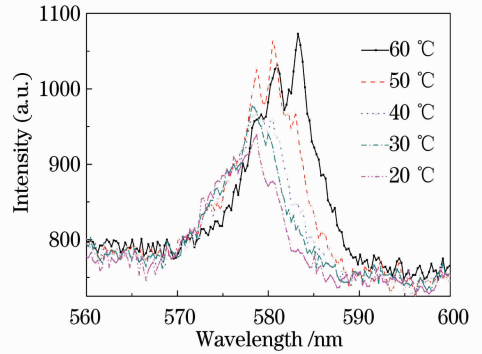


图 5 随机激光器的温度调谐特性

Fig. 5 Temperature tunability of the random laser

3 弱散射结构随机激光器中的腔耦合

到目前为止,强散射系统中随机激光器的相干辐射机制已经被广泛接受,即相干振荡是由散射系统中的光子局域决定的。而对应弱散射随机激光相干辐射的机制仍是一个尚未解决的问题。很多研究者在这方面进行了探索^[13,16,18,21,24,30~32]。但是,正如文献^[31]指出:两种观点给出了相反的解释。Wiersma 等^[10]研究了弱散射随机激光中放大的扩展模,他们认为不同抽运脉冲激发的相干峰是不同的,并且是源自于抽运光沿长弹道方向的放大自发辐射(ASE)。与此相反,Cao 课题组^[16]发现,弱散射随机激光辐射模式的频率间隔是固定的,这是腔反馈振荡的典型特征。Cao 课题组^[24]通过数值计算证明,弱散射系统中的激光辐射是相位相干的,其模式是可重复的而且与初始噪声激发无关,同时,这些模式扩散到整个散射系统中。尽管上述机制能够在特殊条件下解释某些实验现象,但并不能对已观察到的全部实验现象给出令人信服的解释。

最近,本课题组在大量实验工作的基础上,提出了一个更加合理的物理机制。采用纳米颗粒作为散射源,其平均自由程约为 1 mm。通常,在这样一个弱散射系统中由于获得的增益相对较低,产生激光是很困难的。然而,在实验中发现,即使用纳秒激光作为抽运源,在合适的条件下仍可获得相干反馈的激光振荡,其阈值甚至低于用皮秒激光抽运的情况。在实验中还发现,尽管出射的模式之间存在竞争,但一旦出现,这些模式的光谱位置是不变的。本文基于大量实验,提出了腔耦合的物理机制。这个机制既可解释单模振荡也可解释多模振荡。

3.1 随机散射结构中的等效微腔

光通过一个无序结构时,会沿不同的路径发生随机散射(见图6),每一个路径对应一个等效的微腔(EMC)。然而,对于某个特殊的波长,只有一个腔可以使其获得足够的增益,从而建立起该波长的激光振荡。这个腔就是平均自由程(MFP)所对应的腔,即平均自由程所对应的微腔在与多个微腔的竞争中最终占据主导地位,并决定了随机激光器的输出波长。

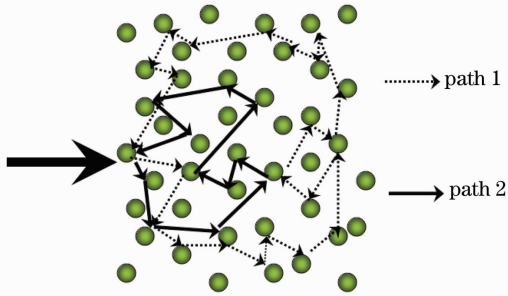
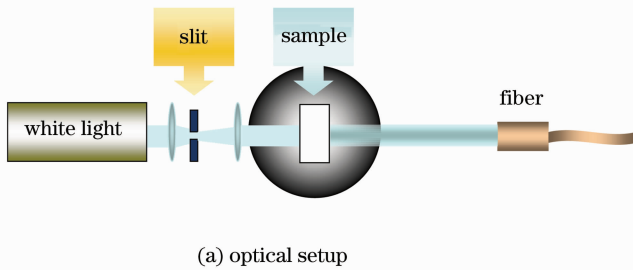


图6 随机结构中的散射路径

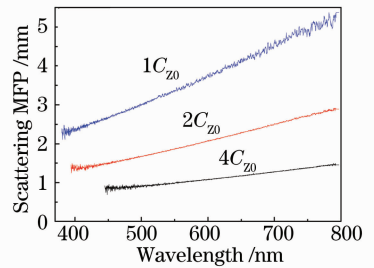
Fig. 6 Scattering paths in a random structure

3.2 平均自由程的确定

用白光来测量散射平均自由程以避免受激过程



(a) optical setup



(b) MFP measurement of different concentrations of ZnO

图7 平均自由程的测量装置和测量结果

Fig. 7 Measurement setup and result of MFP

3.3 实验与实验结果

图8为实验装置,取若丹明6G的甲醇溶液作为增益介质,氧化锌(ZnO)纳米颗粒为散射体。平均直径为28 nm的氧化锌颗粒构成了弱散射随机结构(见图9)。抽运光源为倍频脉冲YAG激光器,工作波长为532 nm,重复频率为10 Hz,脉冲宽度为8 ns,谱线宽度为30 GHz,光束直径为8 mm。R6G溶液置于1 cm(长)×1 cm(宽)×4 cm(高)的比色皿中。抽运光通过一分束镜后射入R6G溶液。比色皿稍微倾斜以防止抽运光束被反射回抽运激光器。实验中,用超声波搅拌R6G溶液以保证溶液均匀性。由R6G溶液出射的光经透镜聚焦在光纤探测器上,以避免其他方向的光进入探测器。所用

的影响^[33]。图7(a)为测量光路。准直的白光光束穿过样品,用光纤探测器探测透射光。首先测量无散射粒子的纯甲醇的透射光强 I_1 ,然后测量含有悬浮氧化锌颗粒的甲醇溶液的透射光强 I_2 。根据Lambert-Beer定律,很容易地由比值 I_2/I_1 可以得到消光系数。在吸收可以忽略的情况下,散射系数 β 近似等于消光系数。则散射平均自由程为

$$M = \frac{1}{\beta} = \frac{T}{\ln(I_1/I_2)}, \quad (1)$$

式中 T 为样品的厚度。图7(b)为不同氧化锌浓度(C_z)下的测量结果。可以看到,平均自由程近似反比于 C_z ,而正比于波长。测量结果显示,对于平均直径为28 nm的氧化锌颗粒溶液随机结构,平均自由程远大于入射光波长,因此,属于弱散射结构。同时,由于颗粒尺度远小于入射光波长,因此,准瑞利散射将起重要作用。这个结果表明,平均自由程并不是决定随机散射系统唯一的特征参数。相同的平均自由程可由不同的参数组合(如说是颗粒直径、折射率)得到,但是,每一种组合对应的出射光谱是不同的。这一特点会影响随机激光器的阈值。

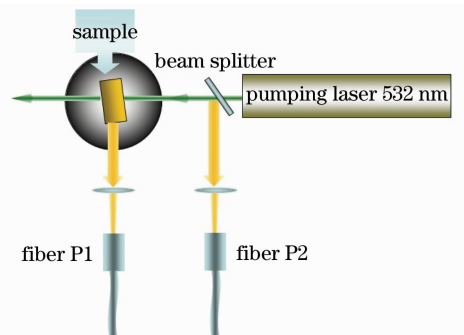


图8 实验装置图

Fig. 8 Experimental setup

光谱仪为海洋光学公司Maya Pro 2000型,光谱分辨率为0.4 nm。在与抽运光成 90° 和 180° 角的方向上测量了随机散射结构的出射光谱。

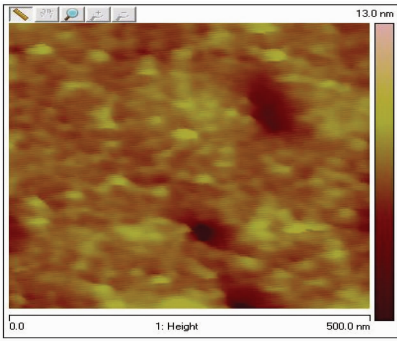


图 9 氧化锌散射颗粒的原子力显微镜照片

Fig. 9 AFM picture of the ZnO scatters

实验中,在一个很大的范围内改变 R6G 的浓度 C_R 和氧化锌的浓度 C_Z 。取 $C_{R0} = 1.3 \times 10^{-3}$ mol/L 及 $C_{Z0} = 3.15 \times 10^{12}$ cm^{-3} 。 C_R 的浓度变化范围是 $C_{R0}/256 \sim 32C_{R0}$, C_Z 的浓度变化范围是 $C_{Z0}/32 \sim 50C_{Z0}$ 。具有最低阈值和最窄线宽的最佳实验结果

在 $4C_{R0}$ 和 $4C_{Z0}$ 的条件下得到。图 10 给出了不同实验条件下测量的与抽运光方向成 90° 角方向的 PL 光谱。可以看到,抽运功率低于 10 mW 时,PL 谱为典型的 R6G 荧光谱其宽度为 51.7 nm。测量谱与用低功率 532 nm 连续激光激发的纯 R6G 溶液荧光谱进行了比较,发现二者完全一致。在抽运功率为 40~120 mW 的范围内,PL 谱为典型的 ASE 谱。抽运功率为 120 mW 时的 ASE 谱线宽度为 5.05 nm,这比荧光谱线宽小一个数量级。当进一步增加抽运功率时,在 ASE 谱的顶部出现了尖锐的峰,抽运功率越高,尖峰的数目越多。抽运功率为 515 mW 时的测量结果是 578.66 nm 处的峰线宽为 0.74 nm,580.83 nm 处的峰线宽为 0.48 nm,583.19 nm 处的峰线宽为 0.51 nm。这些尖峰的线宽均比 ASE 的谱线宽度小一个数量级。其中 580.83 和 583.19 nm 两个峰的线宽值已接近我们所用光谱仪的分辨极限。

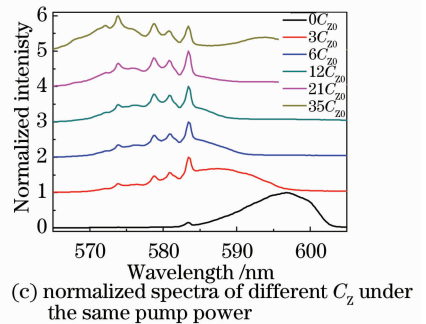
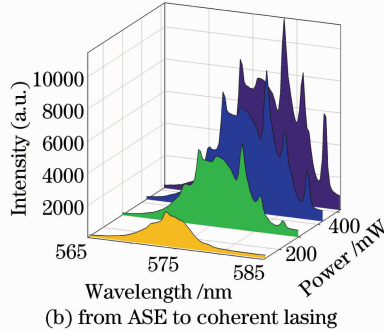
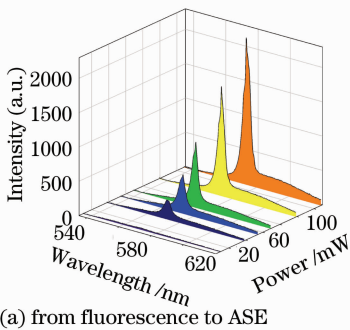


图 10 不同抽运功率下样品出射方向与抽运光成 90° 时的 PL 谱

Fig. 10 Photoluminescence spectra of the sample in the 90° direction under different pump powers

在实验中发现,在相同的实验条件下,不同脉冲所激发的谱是不变的。这表明,这些相干峰是由腔的相干反馈产生的,而不是文献[21]所说的由长增益长度导致的 ASE。另外,这些模与抽运光的入射位置无关。即这些模是由弱散射的反馈产生的,而不是强散射中 Anderson 局域的结果^[34]。这与本课题组测量的平均自由程(约 1 mm)是相符合的。通常,抽运功率不同时将出现不同的模式。然而,在弱散射系统实验中,某些模式在不同抽运功率下可能出现也可能不出现,但一旦该模式出现,则其在光谱中的位置是固定的,且与抽运功率的高低是无关系的。本课题组的实验还表明,这些模式的光谱位置不随散射颗粒氧化锌的浓度 C_Z 和探测方向的变化而改变。这个现象是令人惊异的,因为本课题组的实验系统是液体形式的随机激光器,其微结构必然随 C_Z 的变化而变化。

给出了 578.66 和 583.19 nm 两个典型相干峰阈值的测量结果,它们分别是 6.536 和 12.789 MW/cm^2 。

短波长相干峰具有较低的阈值可以用关于图 7(b)说明中的准瑞利散射来解释。由于较短波长的光所对

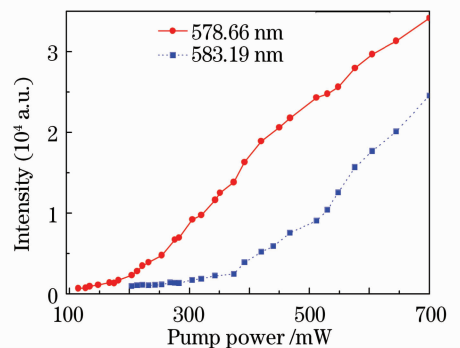


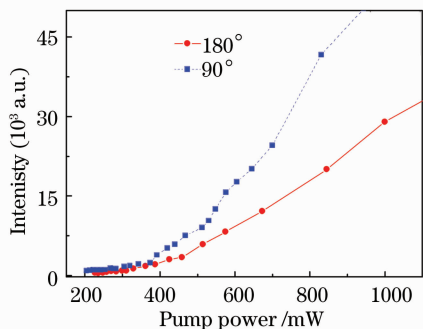
图 11 578.66 和 583.19 nm 相干峰在 90° 方向上阈值的测量结果

Fig. 11 Thresholds of coherent peaks at 578.66 and 583.19 nm in the direction of 90°

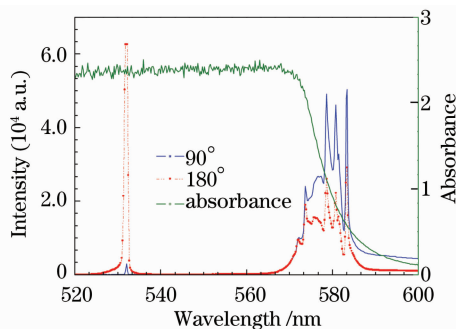
本课题组还仔细测量了每个模式的阈值。图 11

应的平均自由程较短,在相同的散射体系中将产生更多次数的散射,因而可获得更高的增益。就我们所知,本课题组得到的阈值是所有无外腔随机激光器中最低的阈值,比典型强散射随机激光器的阈值 0.8 MW/cm^2 ^[4] 仅高一个数量级。本课题组的实验结果与文献[24]中给出的数值模拟结果是不同的。

图 12(a)给出了 583.19 nm 相干峰在 180° 方向上的阈值。作为比较, 90° 方向的阈值也在图中给出,发现这两个方向上的阈值是相同的。而图 12(b)显示出这两个方向的出射光谱是非常相似的,只是在激发



(a) thresholds at 583.19 nm peak in the directions of 90° and 180°



(b) measured spectra in the directions of 90° and 180°

图 12 90° 和 180° 方向上相干辐射的阈值和出射光谱

Fig. 12 Thresholds and emission spectra of the coherent radiation measured in the directions of 90° and 180°

3.4 分析与讨论

本文报道的新的实验现象无法用原有的物理机制去解释,因此,需要建立新的物理机制。本课题组在大量实验的基础上总结规律,提出了一个新的关于弱散射随机激光器的物理机制。在这个新机制中,腔耦合是最关键的因素。图 13 为腔耦合的示意图。当抽运光以宽的范围射到散射系统时,可以形成多个闭合回路(即等效腔),图 13 中只给出了两个,分别用红色和黄色标出(彩图请见网络电子版)。每一个腔都有对应的模式。随着抽运功率的增加,一个腔(例如黄色标志的腔)所对应模式中的一个将满足阈值条件而形成激光振荡。由于结构内在的随机性,这个振荡模式会作为种子被耦合到另一个腔(例如红色标志的腔)。在图 13 中,散射粒子 A 起着分束镜的作用,它将两个腔通过散射联系在一起。即使第二个腔的本征模尚未建立起来,只要第一个腔模的种子在第二个腔中能够获得足够的增益,这个模就有可能在第二个腔形成振荡。这时,同一个模式将在两个腔中振荡。在实际散射系统中,有大量的腔存在,每一个散射颗粒都会将一定数量的腔联系在一起。因此,整个弱随机散射系统会形成一个由大量微腔共同作用的分布反馈体系,从而使一个模式在所有腔中产生振荡,并在各个方向上出射。

谱的 577 nm 附近有微小的差别。这个差别源自于染料分子的再吸收和 532 nm 抽运光在两个方向上传播时能量差别的共同作用。这里回顾一些已有的有关强散射随机激光的报道:1999 年, Cao 等^[4]“由多重散射形成的不同激光腔将有不同的出射方向,因此,不同方向观察到的模式将是不同的”。2000 年, Jiang 等^[6]“随机激光的光谱是与方向有关的,而不是各向同性的”。本课题组的实验结果与强散射系统显然是不同的。

另外,非常重要的一点是,各个方向的腔对应于同一个平均自由程,因此,整个随机系统中腔的平均增益长度和平均损耗在各个方向是均匀分布的。这就是不同方向上阈值相同的原因。另一方面,一旦一个模式在一个腔中振荡,它将被耦合到整个散射系统中,因而能够在整个散射系统中获得增益。这就是阈值比人们想象的要低的原因。随着抽运功率的增加,具有较高阈值的模也将获得足够的增益而形成振荡。这就是实验中观察到多个相干峰的原因。

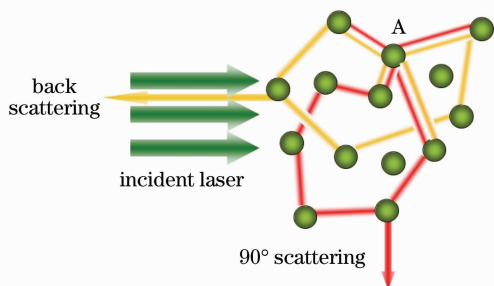


图 13 腔耦合示意图

Fig. 13 Diagram of cavity coupling

对于强散射系统, MFP 小于入射光波长^[4]。设 532 nm 的光作为抽运源时,平均自由程为 500 nm 。如果形成一个闭合腔需要 10 次散射,则等效腔长 L 为 $5 \mu\text{m}$ 。由此,可以用行波模式估算出纵模间隔。

利用 $\Delta\nu=c/nL$ (n 为介质折射率), 可以得到纵模间隔为 $\Delta\nu_1 \approx 3.0 \times 10^{13}$ Hz, 相干反馈随机激光器的线宽约为 $0.2 \sim 0.5$ nm, 这对应于 $\Delta\nu_3 = 1.76 \sim 4.41 \times 10^{11}$ Hz (在 580 nm 附近), 即线宽比模间隔小两个数量级。不同方向的腔所形成的模式是很难重叠的, 这意味着在强散射系统中腔耦合是不能实现的。因此, 不同方向的出射光谱是不同的。

而对于本课题组实验中的弱散射系统, 平均自由程为 1 mm, 介质折射率约为 1.3。可以得到模间隔为 $\Delta\nu_2 \approx 2.26 \times 10^{10}$ Hz。可以看到, 线宽 $\Delta\nu_3$ 比模间隔大一个数量级, 不同方向的腔形成的模很容易发生重叠, 即弱散射系统可以很容易地实现腔耦合。因此, 弱散射系统随机激光器的出射光谱是与方向无关的。

本课题组提出的新物理机制也能够解释为什么相干峰的波长与散射颗粒的浓度 C_z 无关。由于弱散射系统的模间隔相对于线宽很小, 由 C_z 变化导致的模间隔的变化对出射光谱的影响非常小。影响出射光谱的主要因素是染料分子能级或能带间的跃迁。

通过下面的实验验证了本文的观点。用一个光参量振荡(OPO)系统作为抽运源, 在保持抽运能量为 50 mJ/脉冲的情况下改变抽运光的波长。实验结果如图 14 所示。可以看到, 抽运波长的变化改变了相干峰的波长。与图 10(c) 比较, 图 14 的实验结果有力地证明了弱散射随机激光相干峰的可能频率是与增益介质的能级相联系的, 而不是由其他因素决定的(如散射颗粒浓度, 抽运功率, 探测方向或边界反射)。

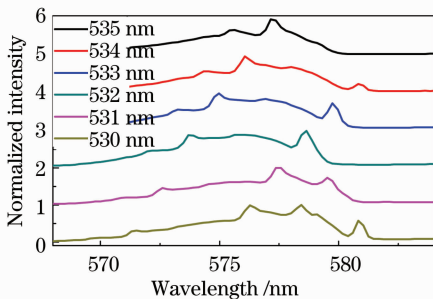


图 14 抽运功率不变、改变抽运波长时在 90° 方向上测量的归一化出射光谱

Fig. 14 Normalized emission spectra of different pump wavelengths under the same pump power in the direction of 90°

根据新的物理机制, 可以推断, 弱散射随机激光器的辐射在空间上是均匀的。图 15 为 90° 出射方向拍摄的随机激光系统的照片。抽运光束的直径为

8 mm。可以清楚地看到, 相对于抽运光入射表面的抽运光中心, 辐射的等照度线在空间方位上是均匀的。图 15 的空间尺度远大于文献 [16] 中的图 4(c), 而且系统尺度与平均自由程的比值也远大于文献 [16] 中的图 4(c)。因此, 图 15 所示的辐射不是文献 [16] 中的 ASE, 这一特性在平板显示中具有潜在的应用价值。

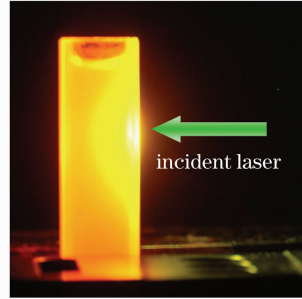


图 15 90° 方向的弱散射随机激光器系统

Fig. 15 A weakly random scattering laser in 90° direction

上述讨论与文献 [21] 关于二维扩散薄膜系统的讨论也是不同的。本文实验系统是一个真正的三维系统。在这个系统中, 腔耦合是很容易实现的。

4 结 论

本文提出的新机制与文献 [24] 不同。文献 [24] 使用一个很巧妙的方法证明一个开放扩散系统的准模式的存在。本文与文献 [24] 给出的实验结果与文献 [13] 是不同的。但文献 [24] 的作者并未得到模式是腔形成的结论。然而, 文献 [16] 中光谱的周期结构明确表明腔的存在。因此, 本文提出的腔耦合是产生观察到的实验现象的根本机制, 文献 [24] 中模式的空间扩展是该机制的一个特例。本文的新机制不但说明一个模式可以在整个弱散射系统内存在, 而且说明了这个模式是如何扩展到整个散射系统中去的。

参 考 文 献

- 1 R. Ambartsumyan, N. G. Basov, P. G. Kryukov *et al.*. A laser with a nonresonant feedback [J]. *IEEE J. Quant. Electron.*, 1966, **2**(9): 442~446
- 2 N. M. Lawandy, R. M. Balachandran, A. S. L. Gomes *et al.*. Laser action in strongly scattering media [J]. *Nature*, 1994, **369**(6470): 436~438
- 3 D. S. Wiersma, M. P. Vanalbeda, A. Lagendijk. Coherent backscattering of light from amplifying random-media [J]. *Phys. Rev. Lett.*, 1995, **75**(9): 1739~1742
- 4 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
- 5 H. Cao, Y. G. Zhao, H. C. Ong *et al.*. Ultraviolet lasing in

- resonators formed by scattering in semiconductor polycrystalline films [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 1998, **73**(25): 3656~3658
- 6 X. Y. Jiang, C. M. Soukoulis. Time dependent theory for random lasers [J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2000, **85**(1): 70~73
- 7 D. S. Wiersma, S. Cavalieri. Light emission—a temperature-tunable random laser [J]. *Nature*, 2001, **414**(6865): 708~709
- 8 T. M. Swager, A. Rose, Z. G. Zhu *et al.*. Sensitivity gains in chemosensing by lasing action in organic polymers [J]. *Nature*, 2005, **434**(7035): 876~879
- 9 H. Cao. Lasing in random media [J]. *Wave Random Media*, 2003, **13**(3): 1~39
- 10 D. S. Wiersma. The physics and applications of random lasers [J]. *Nature Phys.*, 2008, **4**(5): 359~367
- 11 S. V. Frolov, Z. V. Vardeny, K. Yoshino *et al.*. Stimulated emission in high-gain organic media [J]. *Phys. Rev. B*, 1999, **59**(8): 5284~5287
- 12 Y. Ling, H. Cao, A. L. Burin *et al.*. Investigation of random lasers with resonant feedback [J]. *Phys. Rev. A*, 2001, **64**(6): 063808
- 13 S. Mujumdar, M. Ricci, R. Torre *et al.*. Amplified extended modes in random lasers [J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2004, **93**(5): 053903
- 14 R. C. Polson, Z. V. Vardeny. Organic random lasers in the weak-scattering regime [J]. *Phys. Rev. B*, 2005, **71**(4): 045205
- 15 R. C. Polson, Z. V. Vardeny. Random lasing in human tissues [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2004, **85**(7): 1289~1291
- 16 X. Wu, W. Fang, A. Yamilov *et al.*. Random lasing in weakly scattering systems [J]. *Phys. Rev. A*, 2006, **74**(5): 053812
- 17 Xiaohua Wu, Hui Cao. Statistics of random lasing modes in weakly scattering system [J]. *Opt. Lett.*, 2007, **32**(21): 3089
- 18 H. E. Türeci, L. Ge, S. Rotter *et al.*. Strong interactions in multimode random lasers [J]. *Science*, 2008, **320** (5876): 643~646
- 19 V. Milner, A. Z. Genack. Photon localization laser: low-threshold lasing in a random amplifying layered medium via wave localization [J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2005, **94**(7): 073901
- 20 J. Fallert, R. J. B. Dietz, J. Sartor *et al.*. Co-existence of strongly and weakly localized random laser modes [J]. *Nature Photon.*, 2009, **3**(5): 279~282
- 21 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
- 22 L. Florescu, S. John. Photon statistics and coherence in light emission from a random laser [J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2004, **93**(1): 013602
- 23 L. I. Deych. Effects of spatial nonuniformity on laser dynamics [J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2005, **95**(4): 043902
- 24 C. Vanneste, P. Sebbah, H. Cao. Lasing with resonant feedback in weakly scattering random systems [J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2007, **98**(14): 143902
- 25 Liu Jingsong, Liu Hai, Wang Chun *et al.*. Threshold and saturation properties of two-dimensional random lasers and mode selection [J]. *Acta Physica Sinica*, 2006, **55**(8): 4123~4131
刘劲松, 刘海, 王春等. 二维随机激光器的模式选择及阈值与饱和特性[J]. *物理学报*, 2006, **55**(8): 4123~4131
- 26 Q. H. Song, L. Y. Liu, L. Xu *et al.*. Electrical tunable random laser emission from a liquid-crystal infiltrated disordered planar microcavity [J]. *Opt. Lett.*, 2009, **34**(3): 298~300
- 27 Tianrui Zhai, Ying Zhou, Shujing Chen *et al.*. Pulse duration dependent and temperature tunable random lasing in weakly scattering structure formed by speckle [J]. *Phys. Rev. A*, 2010, **82**(2): 023824
- 28 S. Gottardo, S. Cavalieri, O. Yaroshchuk *et al.*. Quasi-two-dimensional diffusive random laser action [J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2004, **93**(26): 263901
- 29 H. Cao, J. Y. Xu, S. H. Chang *et al.*. Transition from amplified spontaneous emission to laser action in strongly scattering media [J]. *Phys. Rev. E*, 2000, **61**(2): 1985~1989
- 30 A. Yamilov, X. Wu, H. Cao *et al.*. Absorption-induced confinement of lasing modes in diffusive random media [J]. *Opt. Lett.*, 2005, **30**(18): 2430~2432
- 31 K. L. van der Molen, R. W. Tjerkstra, A. P. Mosk *et al.*. Spatial extent of random laser modes [J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2007, **98**(14): 143901
- 32 J. Andreasen, H. Cao. Spectral behavior of partially pumped weakly scattering random lasers [J]. *Opt. Express*, 2011, **19**(4): 3418~3433
- 33 X. D. Zhang, Z. Q. Zhang. Coherent backscattering of light in a strong localization regime [J]. *Phys. Rev. B*, 2002, **65**(15): 155208
- 34 C. Vanneste, P. Sebbah. Selective excitation of localized modes in active random media [J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2001, **87**(18): 183903