

In this thesis we report on our investigations of random lasers. The title of this work, Experiments on random lasers, expresses the key role for experiments in this research, but implicitly includes theory, too. We summarize the scientific results.

Random lasers are strongly scattering media with optical gain. These systems have many features in common with more conventional lasers based on an optical gain medium enclosed in a cavity with two mirrors to enhance stimulated emission. An example is the observation of a threshold for lasing action and frequency narrowing in random lasers. Evidently, the optical properties of random lasers are quite different from conventional lasers: the propagation of pump and fluorescence light is diffusive, and—in absence of well-defined cavity modes—there is no “preferred direction” in feedback and loss processes. The ambiguity as to what exactly constitutes the loss in a random laser, how optical feedback works if it is non-directional, and the theoretical prediction of a intensity divergence, have led to a continuing debate about what happens at, and above, the laser threshold.

There are essentially two approaches to random lasers: one from the viewpoint of laser physics, and one from the viewpoint of multiple scattering of light. The former perspective regards the system as a peculiar laser, and provokes questions into the laserlike behavior: why is there a threshold, what are its properties and what determines them? The latter perspective addresses the random laser as a multiply scattering system with an extra asset: gain. This is particularly interesting if one recalls that absorption is detrimental to many effects in light transport that depend on the survival of long light paths. Minute amounts of absorption can be detected by enhanced backscattering. Gain, however, can be understood up to a certain level as negative absorption, and so could bring out interesting phenomena.

In chapter 1 we introduce the concepts we use in building our picture of random lasers. It draws strongly on elements from both multiple scattering and from laser physics. We start by outlining the basics of classical light–matter interaction, emphasizing the connection between scattering and absorption/gain by treating them on the same footing whenever possible, and present light diffusion in that framework. This

is followed by a brief tutorial in laser physics, based on semiclassical rate equations, including amplified spontaneous emission and laser dye properties. We conclude the chapter with a presentation of random lasers, in our work usually consisting of a suspension of colloidal titania (TiO_2) scatterers in a solution of Sulforhodamine B laser dye in methanol.

One of the primary questions stemming from the “laser perspective” is how the multiple-scattering characteristics influence the threshold in a random laser. In chapter 2 we first present the phenomenology of the laser threshold. Subsequently we describe our experiments investigating the effect of the size of the amplifying volume on the threshold, and so studying the efficiency of diffusive feedback. We demonstrate a strong dependence of the threshold pump fluence on the beam diameter. This effect is due to multiple scattering: it is not observed in the absence of scatterers. Light is amplified less strongly if the amplifying region of the sample has a small diameter, in the order of 5ℓ , giving rise to a threshold that is up to 70 times higher than if the gain volume is large. The experimental data are accurately reproduced by a Monte Carlo random walk simulation.

In the “standard” theory of random lasers, developed from a multiple-scattering perspective, one introduces gain in a scattering medium by a fixed negative absorption coefficient. This has the serious drawback of producing a diverging intensity at the point where the amount of generated light becomes too large to be transported. This explosion has been identified with the laser threshold. In chapter 3 we demonstrate that in a realistic system this explosion does not exist. To the standard theory we add the crucial ingredient of population dynamics, producing gain saturation and a relaxation oscillation by which the threshold crossing is accompanied. Above the laser threshold the population inversion is fixed at a level where the (local) gain exactly compensates the (local) loss, like in an ordinary laser the modal gain equals the modal loss. We introduce β for a random laser, the fraction of spontaneous emission contributing to the laser process. We obtain the random laser threshold from a transport formalism, taking into account the local gain in a population rate equation. The theoretical results presented in this chapter further connect to experimental observations in explaining the proportionality of the laser output with the pump above threshold.

The validity of the model of chapter 3 is established by a quantitative comparison with measurements in chapter 4. Two classic experiments from the physics of multiple light scattering, speckle statistics and enhanced backscattering, are presented in this chapter. Extending the experiment in chapter 2, where a measurement was performed on amplified fluorescence, we now use an externally applied probe beam with known and controlled characteristics. First we discuss speckle in a random laser. In contrast with speckle in passive systems, measurements of the intensity

statistics and the speckle spot size in a random laser do provide information on light transport. The typical Rayleigh statistics of speckle allows a discrimination between fluorescence and amplified probe light, and so lets us determine the amount of amplification that an applied probe experiences near the maximum of the gain, where spectral separation is not possible.

The angular speckle spot size is a measure of the transverse dimension of the diffuse source. We show that this apparent source size increases if the medium is amplifying, due to a larger weight that long light paths get in the ensemble: the speckle spots get smaller. The prediction of chapter 3, that the gain should be invariant well above threshold, is confirmed by the pump-independent spot size in this regime. The average path length is found to be more than 2 times longer than in the passive material.

In the second half of chapter 4 we review our enhanced backscattering experiments. The cone narrows by as much as a factor 3 under the influence of gain upon increasing the pump from zero to above threshold. The long paths, constituting the top of the cone are amplified more strongly and this results in a narrower backscatter cone. Far above threshold the cone shape is approximately constant, reflecting the pump-invariance of the saturated gain. The measured cone shapes can be reproduced well with the data of the model presented in chapter 3, provided we carefully take the dynamics of the problem into account. The typical transport time scales involved in the formation of the backscatter cone are entangled with the time constant of the intrinsic dynamics of a random laser crossing the threshold.

In recent literature, there has been a series of publications reporting on the observation of narrow frequency structure in the fluorescent emission of random lasers. Their occurrence was interpreted as a manifestation of light localization, supposedly resulting in a “coherent random laser” operating in random ring cavities formed by scattering. Chapter 5 concerns our efforts to observe and explain these “narrow peaks”. We first present a critical review of literature data, with an assessment of the physical qualities of such a hypothetical random ring cavity. Our own measurements on ZnO powders show that they do not nearly scatter sufficiently strongly to be localizing. Furthermore we observe a very peculiar nonlinearity in the dependence of the emission spectrum and intensity on pump energy and pulse rate. The characteristics of the emission depend strongly on the particular powders, possibly differing in many properties but not in the scattering parameters. Based on these results we conclude that an explanation for the narrow peaks in terms of an optically active electronic excitation in the semiconductor is a more likely candidate than one dependent on scattering. A repetition of the experiment with a dye-based random laser does not yield conclusive results.

Een van de leuke kanten van werken met licht is dat je kunt zien wat je doet. Op de kaft van dit proefschrift staan verschillende voorwerpen met twee gemeenschappelijke eigenschappen: ze zijn ondoorzichtig en roze. Dat zijn ook eigenschappen van de materialen waarmee de meeste experimenten die in dit proefschrift worden beschreven, gedaan zijn. Een voorbeeld van zo'n materiaal is de vloeistof in het flesje op de achterkant, middelste foto. We hebben onderzoek gedaan naar de manier waarop licht vooruit komt in zo'n systeem. Eerst zal worden uitgelegd wat die kleur en ondoorzichtigheid betekenen voor het licht, en wat een random laser is. Verderop gaan we in op de wetenschappelijke resultaten van het onderzoek.

Een voorwerp is doorzichtig als het aan twee voorwaarden voldoet: licht moet er doorheen kunnen reizen, en het moet dat in een eenduidige richting doen. De eerste voorwaarde wil zeggen dat het licht niet wordt geabsorbeerd door het materiaal waarvan het voorwerp gemaakt is. Er komt dus evenveel licht uit als er in ging. De absorptie van licht is meestal verschillend voor verschillende kleuren licht. De kleur van een fietsreflector wordt veroorzaakt doordat groen en blauw licht worden geabsorbeerd uit het opvallende witte licht, waarna geel en vooral rood overblijven. Het resultaat is dat we het plastic van de reflector waarnemen als rood. Een materiaal dat groen licht absorbeert is dus niet goed doorzichtig voor die kleur, maar kan wel transparant zijn voor andere kleuren.

De tweede voorwaarde voor transparantie van een voorwerp betekent dat het voorwerp het licht niet teveel verstrooit. Verstrooiende dingen zien er meestal wit uit. Wolken zijn een voorbeeld: het licht beweegt zich vooral door lucht, maar komt onderweg kleine waterdruppeltjes tegen. Water heeft andere eigenschappen voor lichtvoortplanting (samengevat in de brekingsindex) dan lucht, daarom spiegelt een wateroppervlak en wordt licht afgebogen (een vis onder water lijkt ondieper te zwemmen dan hij doet). De waterdruppels in een wolk zijn zo klein, met zo'n krom oppervlak, dat dat spiegelen en afbuigen in meerdere of mindere mate in alle richtingen gebeurt. Dat heet verstrooiing. De lichtstraal die op de waterdruppel viel heeft zich alle kanten op verspreid. Hoe groter het verschil in brekingsindex

tussen verstrooier en omgeving, hoe sterker de verstrooiing. Als het licht vaak verstrooid wordt op de weg door de wolk, dan is het niet meer duidelijk waar het aan de bovenkant de wolk in gegaan is. Dit heet veelvoudige verstrooiing en de wolk is dan ondoorzichtig: we kunnen de zon niet zien. Het licht in de wolk is diffuus. Andere veelvoudig verstrooiende dingen zijn melk of verf.

Het blijkt in de praktijk handiger om licht in zo'n geval niet als een golf, maar als een verzameling deeltjes te beschrijven. Over de individuele deeltjes zeggen we niets, microscopisch bekeken blijft licht een golf. We zijn vooral geïnteresseerd in hoeveel van die lichtdeeltjes ergens zijn, de dichtheid. Die blijken we goed te kunnen beschrijven als diffusie, een erg algemeen transportverschijnsel. Een voorbeeld van diffusie is de verspreiding van een inktdruppel in een glas water: als de druppel in het glas valt is er ter plaatse veel inkt en elders niets, maar met het verstrijken van de tijd verspreidt de kleur zich door het hele glas, zij het verdund.

We werken met een mengsel van een verstrooiend wit poeder (titaandioxide, hetzelfde pigment dat tandpasta wit maakt) in een rode kleurstof. Het resultaat is een roze suspensie. De moleculen in de kleurstof absorberen groen licht, vandaar de kleur, en raken daardoor in een aangeslagen toestand. Het groene licht heet de "pomp". De moleculen hebben de energie uit de pomp in zich opgeslagen, ten koste van het groene licht. Nu kan de kleurstof rood licht versterken: rood licht dat een aangeslagen kleurstofmolecuul tegenkomt kan van dat molecuul als het ware een extra lichtdeeltje meekrijgen waardoor die rode lichtbundel de energie van het molecuul overneemt. De kleurstof is dan "roder dan rood": de kleur ontstaat niet alleen doordat groen licht wordt geabsorbeerd, maar ook door versterking van opvallend rood licht. Een versterkend, verstrooiend materiaal heet een "random laser".

Lasers maken gebruik van versterking. Normaal gesproken bestaat een laser uit een versterkend medium, bijvoorbeeld zo'n kleurstof, en een zogenaamde "trilholte", gevormd door spiegels. De lichtgolf wordt tussen de spiegels heen en weer gekaatst, en wordt ondertussen versterkt door de kleurstof. Een van de spiegels is niet perfect reflecterend om de laserbundel uit de trilholte te laten ontsnappen. Als de versterking groot genoeg is (door voldoende te pompen) om het lek door de spiegel te compenseren is de laser "aan". De overgang tussen uit en aan heet de laserdrempel.

Er is veel onderzoek gedaan aan lichtvoortplanting in verstrooiende media en nog veel meer aan lasers, zowel voor toepassingen als uit "nieuwsgierigheid". Ons onderzoek is gedaan uit nieuwsgierigheid. Er zijn twee gezichtspunten op random lasers te onderscheiden: één vanuit het veld van veelvoudige verstrooiing, en één vanuit de laserfysica. Er is een duidelijke analogie tussen random en gewone lasers. Gezien vanuit het laser-oogpunt dient zich de vraag aan wat de achtergrond is van deze analogie, waarom twee systemen met zo sterk verschillende optische eigenschappen zich soms zo vergelijkbaar gedragen. Aan de andere kant,

voor veelvoudige verstrooiing van licht is absorptie bijna altijd een probleem. Veel boeiende verschijnselen gerelateerd aan lichttransport verdwijnen in absorberende media. In die zin is het interessant om lichttransport te onderzoeken in versterkende (“anti-absorberende”) verstrooiende media: random lasers.

Waar in de gewone laser de spiegels de functie hadden om het licht vaak het versterkende medium te laten passeren, wordt deze rol in een wanordelijk systeem vervuld door veelvoudige verstrooiing. Een bochtig pad tussen twee punten is langer dan een recht pad. Zo bevindt licht zich langer in een veelvoudig verstrooiend dan in een transparant versterkend medium en kan zo dus meer versterkt worden. Hoe meer verstrooiing, hoe langer het licht binnen blijft, dus hoe beter de versterking werkt. Als een gevolg hiervan gedraagt een random laser zich in sommige opzichten als een normale laser. Er is bijvoorbeeld een drempel, en ook zie je dat licht met de kleur die het meest versterkt wordt het “wint” van andere kleuren: net als in een gewone laser wordt die kleur het meest uitgezonden, ten koste van de andere.

De verschillen met een gewone laser zijn minstens even groot als de gelijkenissen. Om die verschillen duidelijk te maken moeten we iets dieper ingaan op wat het betekent dat licht zich gedraagt als golf. Een golf op een wateroppervlak is een serie toppen en dalen die zich langs dat oppervlak voortbewegen, gekarakteriseerd door een golflengte en een snelheid. Twee golven interfereren: als de toppen van beide precies samenvallen dan is de golfhoogte plaatselijk tweemaal zo groot (constructieve interferentie), terwijl de golven elkaar helemaal kunnen uitdoven—het resultaat is een glad wateroppervlak—als de toppen van de een in de dalen van de ander terechtkomen (destructieve interferentie). De golflengte van licht zien wij als kleur.

Versterking van licht is coherent: de golf die wordt uitgezonden door het kleurstofmolecuul loopt precies in de pas met de invallende lichtgolf (de toppen en dalen vallen precies samen) en heeft dezelfde richting. Doordat tussen de spiegels van de lasertrilholte precies een geheel aantal golflengtes past, voegt elk versterkingsproces licht toe dat precies gelijk loopt met de rest. Zo kan boven de laserdrempel door constructieve interferentie een zeer sterk lichtveld opgebouwd worden in de laser. In een random laser is dit natuurlijk niet het geval. Er zijn geen spiegels en dus lopen de toppen van de versterkte lichtgolven niet gelijk, maar allemaal door elkaar.

Het eerste rode licht, dat het versterkingsproces in een random laser start, noemen we de kiem van het proces. Hij kan van buiten komen door dat we het materiaal beschijnen met een flits rood licht, maar kan ook ontstaan doordat een kleurstofmolecuul hem “spontaan” uitzendt (fluorescentie). Een medium zonder versterking vormt een weinig vruchtbare bodem voor de kiem en de kleine hoeveelheid licht wordt verdund als de inkt in het water, diffusief verspreid door het hele glas. Maar als hij voldoende versterkt wordt, dan ontstaat onderweg steeds meer licht en groeit de kiem uit tot een krachtige lichtpuls. “Voldoende” wil zeggen dat het verlies van

licht naar buiten (waaraan we meten) wordt gecompenseerd door de versterking: het systeem is boven de drempel.

We pompen de random laser door de kleurstof aan te slaan met een groene lichtpuls. Dat groene licht wordt geabsorbeerd in een laag bij het oppervlak van het materiaal. Voor grotere diepte is er geen groen licht over; het wordt ook deels naar buiten verstrooid. In die gepompte laag kan rood licht versterkt worden. Licht dat dieper het systeem in diffundeert kan later weer terugkomen in de voorste laag, waar het ontstaan is.

Dit zijn de belangrijkste ingrediënten voor de experimenten en theorie die in dit proefschrift worden beschreven. In hoofdstuk 2 variëren we de afmeting van het gepompte gebied. Als het gepompte gebied klein is ten opzichte van de typische afstand waarover licht zich verspreidt, dan heeft het rode licht dat terugkeert in de voorste laag na een uitstapje diep het systeem in, een grote kans het versterkende gebied te missen. Het wordt dan minder versterkt en zodoende wordt de drempel pas bereikt bij een (veel) grotere energie van de groene pompuls.

Wat er precies gebeurt bij de drempelovergang onderzoeken we theoretisch in hoofdstuk 3. Lange tijd is een theoretisch model voor random lasers gebruikt, dat een soort explosie voorspelt: de hoeveelheid rood licht groeit naar oneindig. Men noemde deze explosie de laserdrempel. Uit vergelijking met experimenten bleek al snel dat dit model geen goede beschrijving van de werkelijkheid vormt. We passen dit diffusiemodel op een aantal punten aan, waardoor de explosie kan worden voorkomen. Ten eerste houden we rekening met verzadiging: als een kleurstofmolecuul vervalt (doordat het licht versterkt of uitzendt), betekent dat dat de lokale versterking een beetje lager is. Er kan één molecuul minder meedoen met de versterking, totdat het weer is aangeslagen door de pomp. Boven de laserdrempel ontstaat zo een evenwicht tussen pomp-absorptie en verval door versterking. De grootte van de versterking in evenwicht is precies voldoende om het lokale lek van rood licht aan te vullen (en hangt dus niet af van de pompenergie). Ten tweede blijkt deze verzadiging maar langzaam op gang te komen en zo kan de versterking “doorschieten” voorbij de evenwichtswaarde. Dat heeft een felle puls rood licht tot gevolg, die (door het versterkingsproces) de hoeveelheid aangeslagen moleculen vermindert tot beneden de evenwichtswaarde. Er wordt minder rood licht uitgezonden, en zo kan de pomp weer meer moleculen aanslaan. Deze cyclus voltrekt zich een aantal keren tot het evenwicht is ingesteld. Hij werkt als een soort veiligheidsklep die de versterking telkens even verlaagt als er teveel rood licht ontstaat. Dynamica is dus belangrijk in de theorie, anders kan deze slingerbeweging niet worden beschreven en krijgen we alsnog de explosie. Ten derde hebben we een methode bedacht om in rekening te brengen dat van de spontaan uitgezonden kiemen slechts de 10% met de goede kleur kan worden versterkt.

Deze drie aanvullingen zijn direct ontleend aan de laserfysica, zij het dat ze zorgvuldig geïnterpreteerd moeten worden, om de evidente verschillen tussen gewone en random lasers geen geweld aan te doen. Met dat voorbehoud blijkt de theorie nu erg goed te werken, en we gebruiken hem om in hoofdstuk 4 verstrooiingsexperimenten te verklaren. We gebruiken nu als rode lichtbron een externe puls, omdat de eigenschappen daarvan veel beter en gemakkelijker te controleren zijn dan van de fluorescentie. We laten die puls verstrooid worden door de random laser, die tegelijk belicht wordt met de groene pomppuls, en meten aan het rode licht dat uit het medium komt. Met twee klassieke interferentie-experimenten uit de veelvoudige lichtverstrooiing tonen we aan dat boven de laserdrempel de versterking inderdaad praktisch onafhankelijk is van de sterkte van de pomppuls. Ook zien we effecten die we toeschrijven aan de dynamische “veiligheidsklep”. We merkten hierboven al op dat versterking afhangt van de lengte van het lichtpad: lange paden worden “bevoordeeld”. Uit onze experimenten blijkt hoeveel: afhankelijk van materiaalparameters vinden we dat de gemiddelde padlengte in een random laser meer dan twee keer zo lang is, vergeleken met het niet-versterkende systeem.

Met deze experimenten en de bijbehorende theorie hebben we laten zien dat de laser-eigenschappen van een random laser, zoals de hoogte van de drempel en de manier waarop die wordt overgestoken, direct zijn af te leiden uit een beschrijving van het systeem in termen van veelvoudige verstrooiing. De twee perspectieven op random lasers blijken te kunnen worden samengevoegd tot één consistent plaatje.

Een tikje vreemde eend in de bijt is hoofdstuk 5. In dit hoofdstuk worden de experimenten beschreven die we hebben gedaan aan de zogenaamde “smalle pieken”. Dit fenomeen werd in de recente literatuur gepresenteerd als een bewijs dat golven in een random laser bij heel sterke verstrooiing weer met elkaar in de pas zouden gaan lopen als in een gewone laser. We hebben laten zien dat de systemen waarin deze smalle pieken zijn gerapporteerd niet voldoende sterk verstrooien om deze coherentie van belang te laten zijn, als hij al bestaat in wanordelijke media. We meten een zeer ongebruikelijk karakter van de intensiteit en de spectrale vorm van de pieken als functie van de pompsterkte. Dit resultaat maakt een verklaring voor dit verschijnsel in termen van elektronische materiaaleigenschappen waarschijnlijker.

Zo’n coherente random laser is wel een interessant systeem, dat waarschijnlijk inderdaad zeer sterke verstrooiing nodig heeft om te bestaan. Het is niet alleen interessant om te kijken hoe zo’n materiaal zich gedraagt en in welke opzichten het anders is dan een “gewone” random laser, maar ook om de analogie met een normale laser verder te onderzoeken. In onze resultaten gaat de vergelijking een eind op, mits de juiste concepten in trilholte-lasers en random lasers worden geïdentificeerd als elkaars equivalent. Op die manier verscherpt random-laseronderzoek niet alleen het inzicht in deze verstrooiende media maar ook het begrip van lasers.