

全带隙光子晶体中依赖原子位置的衰减动力学性质^{*}

顾本源[†] 王雪华

(中国科学院物理研究所 北京 100080)

摘要 介绍一个二能级原子在全带隙光子晶体带边附近的衰减动力学行为. 发现原子位置的变化会根本地改变激发原子的衰减特性. 由于光场和原子之间局域耦合强度的巨大差异, 导致 Weisskopf-Wigner 和非 Weisskopf-Wigner 衰减现象. 预言可通过控制原子的位置来实现人工剪裁荧光光谱.

关键词 全带隙光子晶体, 原子自发辐射

Characteristics of decay kinetics of atoms in photonic crystals with absolute gaps

GU Ben-Yuan[†] WANG Xue-Hua

(Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100080, China)

Abstract The characteristics of the decay kinetics of a two-level atom near the band edges of photonic crystals with absolute gaps are analyzed. It is found that the decay behavior of an excited atom can be fundamentally changed by the variation of the atomic position: the Weisskopf-Wigner and non-Weisskopf-Wigner decay phenomena occur at different atomic positions as a result of a significant difference in the local coupling strength between the photons and an atom. Our finding implies that it is possible to tailor luminescence spectra by controlling the atomic position.

Key words photonic crystals with absolute gaps, spontaneous emission of atoms

信息科学和产业梦寐以求的是实现更快速、大容量、抗干扰性强以及更低能耗的信息传输. 目前的电子学技术已接近理论极限, 因此, 人们自然想到能否利用光子作为信息载体呢? 因为光子有着电子所不具有的十分突出的优点: 传播速度快, 频带宽 (可达到几十兆兆赫兹), 光子之间没有相互作用, 因此能耗低, 非电子性抗干扰能力强. 人们企盼研制成功全光型的集成功能器件. 光子晶体提出和研制成功, 使人们能够控制光子流动, 就像控制金属和半导体中电子一样灵巧. 光子晶体这一新型材料在未来的电子产业上具有极其诱人的应用前景.

光子晶体的物理概念首先提出于 1987 年, 由美国贝尔通讯研究中心的 Yablonovitch^[1] 和普林斯顿大学物理系的 John^[2] 分别独立地提出的. 光子晶体是一种具有周期性调制介电函数且具有光子能带和带隙结构的一类人造材料. 它具有奇特的调控光波传播的本领. 在半导体中, 原子点阵对电子的传播施加了一个周期性的势场, 使电子的能谱成带状结构. 能谱中出现带隙, 此时, 电子沿任何方向都不能传播. 与此类比的是, 在光子晶体中, 周期势为宏观

介质点阵. 当介质的光散射足够强时, 也会出现完全带隙. 全光子带隙结构指的是, 存在着这样的频率窗口, 频率落在此窗口内的电磁波, 在光子晶体中沿任何方向都将被禁止通行.

当裸原子的跃迁频率落在光子晶体的带隙之中时, 其自发辐射性质到底发生哪些变化呢? 它会被完全抑制或部分地被禁止? 采用不同的光子的色散模型, 便会得到截然不同的结论. 一维光子晶体的各向同性色散模型^[3,4], 可预言许多新现象, 例如, 反常拉姆能级移动, 原子自发辐射的振荡行为, 反常超辐射速率以及增强的量子干涉效应. 但是它有一个致命的缺点, 其光子态密度近带边时存在着奇异性, 不合理. 为了避免这一奇异性, 人们采用各向异性色散模型^[5,6], 它预言强的扩散场和光子扩展态共存; 另一方面, 它否定了光子-原子束缚态可以与光子传播态共存这一点. 人们已经认识到光子局域态密度的精确计算, 对预言光子晶体实际量子电动力学性质是至关

^{*} 国家重点基础研究发展计划 (批准号 2001CB6104) 资助项目
2003-09-18 收到

[†] 通讯联系人. E-mail: guby@aphy.iphys.ac.cn

重要的.李志远^[7]等人曾经实际计算了三维光子晶体中光子局域态密度.应用全矢量的电磁场理论,并且考察近带边光子局域态密度特性,得出结论:Weisskopf-Wigner 微扰近似(WWA 近似)对三维光子晶体是普适的.这一结论否定了色散模型的预言.但是,他们没有考虑原子与光场之间的耦合在光子晶体中可被显著增强的效应.因此,这是光子晶体领域内具有重大争议、而且也是非常困难的和具有挑战性的问题.最近,我们首次把依赖原子位置的光子-原子相互作用引进时间域格林函数方法中,对光子晶体中二能级原子的自发辐射问题,给出了一般性理论处理,得到一个普适描述光子晶体中原子辐射衰减的广义洛伦兹谱公式^[8,9].它突破了色散模型和 Weisskopf-Wigner 微扰近似的理论框架.同时还修正了长期以来在计算光子局域态密度上的一个不正确的假定:即电场本征模在晶格点群对称操作下是不变的.我们提出了一个正确的变换关系^[10],使局域态密度的计算简化到约化第一布里渊区内,大大节省计算时间.我们的理论预言,原子在光子晶体中位置的变化能根本地改变原子的光辐射性质:在强相互作用位置上,原子的辐射衰减是非指数的或呈现阻尼拉比震荡,而在弱相互作用位置上,原子的辐射衰减是指数的.这一发现对于其他强非均匀电磁系统具有普适性,如单分子光谱领域中的金属纳米系统.它为光辐射控制开辟了新的途径.

我们来考察一个二能级的原子在理想的无缺陷的光子晶体中的光辐射特性.在旋波近似下,应用演化算子的格林函数表达式,当一原子处于光子晶体内的 r 处,原子的二能级之间的跃迁偶极矩为 u_d 时,激发原子衰减的时间行为由下式描述:

$$C_c(t) = \int_{-\infty}^{\infty} d\omega C_c(\mathbf{r}, \omega) e^{-i\omega t}, \quad (1)$$

这里

$$C_c(\mathbf{r}, \omega) = \frac{1}{\pi} \lim_{\eta \rightarrow 0^+} \frac{I(\mathbf{r}, \omega) \gamma / 2 + \eta}{[\omega - \omega_0 - \Delta(\mathbf{r}, \omega)]^2 + [I(\mathbf{r}, \omega) \gamma / 2 + \eta]^2}, \quad (2)$$

式中 $I(\mathbf{r}, \omega)$ 表示局域耦合强度, $\Delta(\mathbf{r}, \omega)$ 表示能级的移动,它们由下式给定:

$$I(\mathbf{r}, \omega) = \frac{\alpha_0 c^3}{8\pi} \sum_n \int_{BZ} dk \frac{|E_{nk}(\mathbf{r})|^2}{\omega_{nk}} \delta(\omega - \omega_{nk}), \quad (3)$$

$$\Delta(\mathbf{r}, \omega) = \frac{1}{2\pi} P \int_0^{\infty} \frac{I(\mathbf{r}, \omega')}{\omega - \omega'} d\omega'. \quad (4)$$

(3) 式中, $\alpha_0 = \omega_0^2 u_d^2 / 3\pi \epsilon_0 \hbar c^3$, 代表原子在真空中的相对辐射线宽(其中 ω_0 是裸原子的跃迁频率, ϵ_0 是真空的介电常数); ω_{nk} 是电磁场本征模的频率; E_{nk} 是其电场强度.在上面推导中,我们假定 u_d 是无规取向的.(2) 式清楚地表明,原子的激发态演化谱是非洛伦兹型的.但是在均匀媒质中,它可近似地简化成洛伦兹型谱线.在均匀媒质中,当接近裸原子的跃迁频率时,相对局域耦合强度是十分小的,因此,可以合理地将(2) 式中的 $\Delta(\mathbf{r}, \omega)$ 和 $I(\mathbf{r}, \omega)$ 中的 ω 用 ω_0 代替,这就导致著名的指数衰减律(WWA 近似).但是,一般地说,对于全带隙的光子晶体中原子的自发辐射,WWA 近似不再成立.下面我们将解答这一点.

我们现在考虑一个金刚石结构的光子晶体:它由折射率为 $n=3.6$ 的介电球浸在空气背景中构成的,填充因子 $f=0.31$.它具有两个绝对带隙,处在 $0.738(2\pi c/a)$ 到 $0.776(2\pi c/a)$ 和 $0.990(2\pi c/a)$ 到 $1.028(2\pi c/a)$. 这里 a 表示晶格常数.图 1 展示了在金刚石结构的光子晶体中,一个激发原子处于三个不同位置下的辐射衰减行为.假定裸原子的跃迁频率 ω_0 分别在它的第二个绝对带隙外[见图 1(a)] 和带隙内[见图 1(b) 和 (c)].原子在光子晶体中的位置是 $r_1=(0, 0, 0)a$, $r_2=(0.05, -0.0125, 0)a$, 和 $r_3=(0.5, 0, 0)a$.从图 1(a) 清楚地看出,当 ω_0 位于带隙外接近带边时,处于 $r=r_1$ 的激发原子的衰减过程是非指数型的;但是位于 $r=r_2$ 和 $r=r_3$ 处的激发原子,其衰减行为是近似指数型的.从图 1(b) 清楚地看出,当 ω_0 位于带隙内接近带边时,处于 $r=r_1$ 或者 $r=r_2$ 的激发态的布居数呈现一个包洛衰减的拉比振荡,它很快地陷入一个分数化的稳态.对于 $r=r_3$ 的激发原子,这个振荡和分数陷阱现象并不出现,此时,WWA 近似是成立的.这些结果表明,在光子晶体中由于激发原子处于不同的位置下,会呈现根本不同的辐射行为.

上述现象能够从下面的讨论中得到解释.由(1) 式和(2) 式可以看出,激发态的衰减过程很敏感地依赖局域耦合强度(LCS)的.在金刚石结构的光子晶体中,当一个原子($\alpha_0=3 \times 10^{-5}$)处在与图 1 相同的三个不同位置时的 LCS, $I(\mathbf{r}, \omega)$, 如图 2 所示.对于这三个原子位置, LCS 都展现急剧的振荡,并且对于原子的不同位置,其禁带边的 LCS 的峰值之间的差别可达 10^3 量级.正是这一巨大的差异,导致了原子辐射行为的本质差异.另外,在光子晶体中,由于原子与光场之间的相互作用,一个缀饰原子

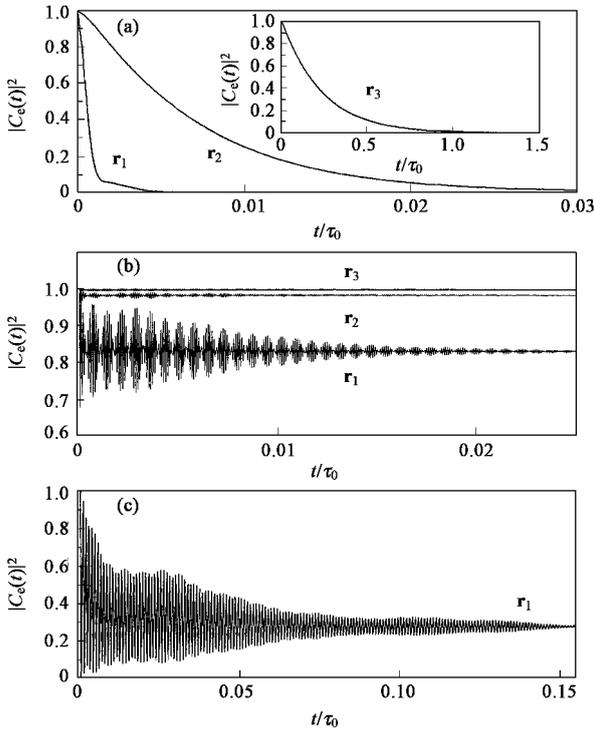


图1 金刚石结构的光子晶体中,位于三个不同位置上的二能级原子的激发态布居数的时间演化行为

(a) 对应于跃迁频率在带隙外 $\omega_0 = 1.032(2\pi c/a)$ 和 $\alpha_0 = 3 \times 10^{-5}$ (b) 对应于跃迁频率在带隙内 $\omega_0 = 1.018(2\pi c/a)$ 和 $\alpha_0 = 3 \times 10^{-5}$ (非共振发射情形) (c) 对应于跃迁频率在带隙内, $\omega_0 = 1.018(2\pi c/a)$ 和 $\alpha_0 = 3 \times 10^{-4}$ (共振发射情形). τ_0 是原子在真空中的寿命

态的频率是由 $\omega - \omega_0 = \Delta(\mathbf{r}, \omega)$ 确定. 当一个带隙内存在一个缀饰原子态时,那么激发态的演化谱在带隙内是一个 δ 函数,它导致一个局域场(LF);同时在带隙外,演化谱对应于传播场(PF). LF 和 PF 的叠加导致激发原子的布居数出现拉比振荡和分数陷俘行为. 然而,当 LCS 很小时,例如原子处于 $r = r_3$ 情形,PF 的存在并不能引起激发态的布居数出现任何可观察的效应. 值得注意的是,有两类发射出现在带隙外,一类是非共振发射,在带隙外不存在缀饰原子态,这就是各向异性色散模型所预言的出现一个小的“扩散场”. 但是,由于它极其小,不会产生任何可观察的布居数振荡,正如图 1(b) 中的 $r = r_3$ 情形. 第二类是共振发射. 此时,在带隙外存在着另一个缀饰原子态,它对应着激发能级的劈裂,这一点正是被各向同性色散模型所预言的. 当 α_0 大于 3.0×10^{-4} 的原子位于 $r = r_1$ 时,这个劈裂将出现. 图 1(c) 展示共振发射下激发原子布居数的时间演化行为. 它呈现完全不同的振荡行为,并且其上能级的稳态布居数是 0.27,它大大小于非共振发射情形(0.83). 一个

二能级原子在逆蛋白石结构的光子晶体中,计算表明也会出现类似的现象.

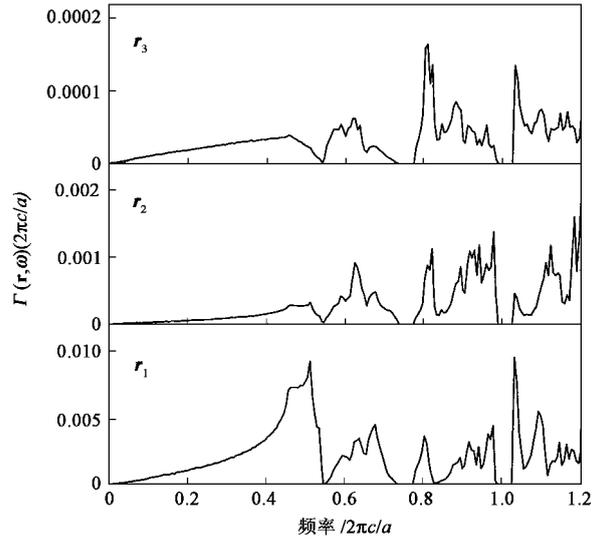


图2 金刚石结构的光子晶体中,当一个原子 ($\alpha_0 = 3 \times 10^{-5}$) 处在与图 1 相同的三个位置时的局域耦合强度 $\Gamma(\mathbf{r}, \omega)$

我们的研究工作表明,在绝对带隙的光子晶体中,一个二能级的原子的自发辐射是强烈地依赖于原子位置的,决定性地影响原子的辐射行为. 本工作将提供一个新的途径,揭示强不均匀的电磁系统(例如金属纳米粒子系统)中原子或分子与光子之间的相互作用性质. 预言可通过控制原子的位置来实现人工剪裁荧光光谱.

参 考 文 献

- [1] Yablonovitch E. Phys. Rev. Lett. ,1987 ,58 :2059
- [2] John S. Phys. Rev. Lett. ,1987 ,58 :2486
- [3] Martorell J , Lawandy N M. Phys. Rev. Lett. , 1990 , 65 : 1877
- [4] Tong B Y , John P K , Zhu Y T *et al.* J. Opt. Soc. Am ,1993 , B10 :356
- [5] John S , Wang J. Phys. Rev. Lett. , 1990 ,64 :2418 ; Phys. Rev. B ,1991 ,43 :12772 ; John S , Quang T. Phys. Rev. A , 1994 ,50 :1764 ; Phys. Rev. A ,1997 ,56 :4273 ; Phys. Rev. Lett. , 1995 ,74 :3419 ; Phys. Rev. A ,1996 ,76 :1320
- [6] Zhu S Y *et al.* Phys. Rev. Lett. , 2000 ,84 :2136 ; Yang Y , Zhu S Y. Phys. Rev. A ,2000 ,62 :013805
- [7] Li Z Y , Lin L L , Zhang Z Q. Phys. Rev. Lett. , 2000 ,84 : 4341 ; Li Z Y , Xia Y. Phys. Rev. A ,2001 ,63 :043817-1
- [8] Wang X H , Wang R Z , Gu B Y *et al.* Phys. Rev. Lett. , 2002 ,88 :093902-1 ; 顾本源 ,王雪华. 物理 ,2002 ,31 :487 [Gu B Y , Wang X H. Wulx(Physics) ,2002 ,31 :487(in Chinese)]
- [9] Wang X H , Gu B Y *et al.* Phys. Rev. Lett. , 2003 ,91 : 113904 -1/ -4
- [10] Wang X H , Zhou R Z , Gu B Y. Phys. Lett. A ,2003 ,308 : 116 ; Wang X H *et al.* Phys. Rev. B ,2003 ,67 :155114-1