

基于有限元法的光子并矢格林函数重整化及其在自发辐射率和能级移动研究中的应用

赵运进 田猛 黄勇刚 王小云 杨红 米贤武

Renormalization of photon dyadic Green function by finite element method and its applications in the study of spontaneous emission rate and energy level shift

Zhao Yun-Jin Tian Meng Huang Yong-Gang Wang Xiao-Yun Yang Hong Mi Xian-Wu

引用信息 Citation: [Acta Physica Sinica](#), 67, 193102 (2018) DOI: 10.7498/aps.67.20180898

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.67.20180898>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2018/V67/I19>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

[运用理想光子禁带模型实现对激发态原子系统演化的调控](#)

Control of evolutionary atomic system of excited atom by using ideal photonic band-gap model

物理学报.2018, 67(9): 094205 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.67.20172050>

[耦合腔阵列与 \$\Lambda\$ -型三能级原子非局域耦合系统中单光子的传输特性研究](#)

Single photon transport properties in the system of coupled cavity array nonlocally coupled to a Λ -type three-level atom

物理学报.2017, 66(15): 154203 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.154203>

[双光子过程耗散耦合腔阵列中的量子相变](#)

Quantum phase transition in arrays of dissipative cavities with two-photon process

物理学报.2016, 65(4): 044205 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.044205>

[SN-分子离子的势能函数和光谱常数研究](#)

Potential energy function and spectroscopic parameters of SN molecular ion

物理学报.2013, 62(11): 113102 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.113102>

[外场作用下蒽分子的激发特性研究](#)

Effects of external electric field on the excitation properties of anthracene molecule

物理学报.2013, 62(7): 073104 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.073104>

基于有限元法的光子并矢格林函数重整化及其在自发辐射率和能级移动研究中的应用*

赵运进¹⁾ 田锰¹⁾ 黄勇刚^{1)†} 王小云¹⁾ 杨红¹⁾ 米贤武²⁾

1) (吉首大学物理与机电工程学院, 吉首 416000)

2) (怀化学院电气与信息工程学院, 怀化 418000)

(2018年5月6日收到; 2018年7月19日收到修改稿)

任意微纳结构中量子点的自发辐射率和能级移动均可用并矢格林函数表达. 当源点和场点在同一位置时, 格林函数的实部是发散的. 为解决这一发散问题, 可采用重整化格林函数方法. 本文提出一种计算重整化格林函数和散射格林函数的方法. 该方法利用有限元, 计算点电偶极子的辐射场, 将其在量子点体积内做平均得到重整化的并矢格林函数, 减去均匀空间中解析的重整化格林函数, 得到重整化的散射格林函数. 在均匀空间情况下, 本方法所得数值结果与解析解一致. 将该方法应用到银纳米球系统, 以解析的散射格林函数作为参考, 结果表明该方法能准确处理散射格林函数的重整化问题. 将该方法应用到表面等离激元纳米腔中, 发现有极大的自发辐射增强和能级移动, 且该结果不依赖于量子点的体积. 这些研究在光与物质相互作用领域具有积极的意义.

关键词: 有限元法, 重整化格林函数, 自发辐射率, 能级移动

PACS: 31.15.-p, 42.50.Pq, 42.50.Nn, 32.70.Jz

DOI: 10.7498/aps.67.20180898

1 引言

根据量子电动力学^[1-3], 自发辐射和能级移动来源于量子点与电磁环境的相互作用. 近年来, 人们设计了各种人工微纳结构来调控它们, 如光子晶体^[4-13]、金属纳米结构^[14-21]等. 对于表面等离激元金属纳米结构, 在金属和电介质界面处可产生表面等离激元共振, 能将光场压缩到纳米尺度, 极大地改变了附近量子点的自发辐射和能级移动特性, 譬如: 单分子荧光增强^[14]、表面等离激元增强发光二极管^[15]、单分子探测^[16,17]、等离激元纳米激光器^[18,19]、拉曼散射增强^[20,21]等. 对于量子点距离金属表面很近的情况, 相互作用的强度甚至能够超过辐射和非辐射的损耗, 使系统进入强耦合区域, 导致了很新奇量子现象^[22-25].

理论上, 自发辐射率及能级移动可用并矢格林函数来表达^[26,27] (即 $\Gamma(\mathbf{r}; \omega) = 2d^2 \Im[\mathbf{n} \cdot \mathbf{G}(\mathbf{r}; \mathbf{r}; \omega) \cdot \mathbf{n}] / \hbar \varepsilon_0$; $\Delta(\mathbf{r}; \omega) = -d^2 \Re[\mathbf{n} \cdot \mathbf{G}(\mathbf{r}; \mathbf{r}; \omega) \cdot \mathbf{n}] / \hbar \varepsilon_0$, 其中, $\Gamma(\mathbf{r}; \omega)$ 为自发辐射率, $\Delta(\mathbf{r}; \omega)$ 为能级移动). 当源点与场点的位置相同时, 格林函数的实部是一个发散的量, 数值计算会遇到困难. 为处理这样发散的物理的能级移动问题, 一种方法是将格林函数分解为均匀部分(发散, 可解析处理^[28-34])和散射部分, 将均匀空间的贡献归结于跃迁频率, 而只考虑散射场的贡献, 用散射格林函数来代替总的格林函数, 该方法是最自然的重整化方式. 2018年, 我们利用基于有限元的 COMSOL Multiphysics 软件, 通过计算有纳米结构和均匀空间两种情况下偶极子辐射场的差, 准确获得了任意微纳结构中的散射格林函数^[26]. 值得注意的是点电偶极子辐射

* 国家自然科学基金(批准号: 11464014, 11347215, 11364020, 11564013, 11464013)、湖南省自然科学基金(批准号: 2016JJ4073)和湖南省研究生科研创新项目(批准号: CX2017B718)资助的课题.

† 通信作者. E-mail: huang122012@163.com

场依赖于人为设定的网格大小, 因此, 在两次计算辐射场时, 只有采用相同的网格, 才能消除发散的部分.

数值技术上, 不仅有限元方法会导致点电偶极子辐射场依赖于网格大小, 时域有限差分方法也有类似的问题. 2012年, van Vlack等^[35]利用时域有限差分法研究耗散系统中的自发辐射问题, 证实该方法得到的偶极子辐射场是点电偶极子所在的网格内的平均场. 物理上, 该发散来源于点电偶极子模型, 考虑量子点的实际大小, 在量子点体积内取平均的重整化方式被广泛采用^[34-36]. 时域有限差分法采用直角矩形网格, 其差分格式会不可避免地导致台阶近似, 相比之下, 有限元法可以应用在更复杂和更精细的纳米结构中, 其网格划分方式更加灵活, 能更好地拟合曲面结构, 可精确地仿真电磁场的急剧变化. 另外, 我们已经证实^[26], 利用有限元可求解任意微纳结构中的散射格林函数问题. 基于以上考虑, 如果有限元方法能准确处理均匀空间格林函数的重整化问题, 则可利用该方法准确处理任意微纳结构中格林函数的重整化问题. 不同于散射格林函数方法, 该方法只需一次仿真, 能极大地减少计算量.

本文介绍了自发辐射和能级移动相关的理论和格林函数重整化及其有限元计算方法; 在均匀空间和纳米球系统中利用基于有限元的COMSOL Multiphysics软件, 证实该算法的可应用性和准确性; 将该方法应用到球-平板纳米腔系统, 研究自发辐射和能级移动问题.

2 理论及算法验证

2.1 自发辐射率和能级移动的并矢格林函数表示

根据量子电动力学^[33], 耗散吸收介质中二能级原子与电磁场相互作用, 电偶极近似下Hamiltonian可写为:

$$\begin{aligned} H &= H_0 + H_1, \\ H_0 &= \int d^3r \int_0^\infty d\omega \hbar \omega \hat{\mathbf{f}}^\dagger(\mathbf{r}, \omega) \cdot \hat{\mathbf{f}}(\mathbf{r}, \omega) \\ &\quad + \hbar \omega_0 |e\rangle\langle e|, \\ H_1 &= - \int_0^\infty d\omega [|e\rangle\langle g| \mathbf{d} \cdot \hat{\mathbf{E}}(\mathbf{r}_0, \omega) + \text{H.c.}], \quad (1) \end{aligned}$$

其中, H_0 是未相互作用部分, 包含电磁场部分和原子部分; H_1 是原子与场之间的相互作用; $\mathbf{d} = \langle g|\hat{\mathbf{d}}|e\rangle = d\mathbf{n}$ 为原子的跃迁偶极子矩阵元, 其大小和方向分别为 d 和 \mathbf{n} ; $\hat{\mathbf{f}}^\dagger(\mathbf{r}, \omega)$ 和 $\hat{\mathbf{f}}(\mathbf{r}, \omega)$ 表示电磁场和介质的产生和湮灭场算符, 满足: $[\hat{f}_i(\mathbf{r}, \omega), \hat{f}_j^\dagger(\mathbf{r}', \omega')] = \delta_{ij}\delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}')\delta(\omega - \omega')$; $[\hat{f}_i(\mathbf{r}, \omega), \hat{f}_j(\mathbf{r}', \omega')] = [\hat{f}_i^\dagger(\mathbf{r}, \omega), \hat{f}_j^\dagger(\mathbf{r}', \omega')] = 0$; ω_0 和 \mathbf{r}_0 为原子的跃迁频率和位置; $|e\rangle$ 和 $|g\rangle$ 分别表示原子的激发态和基态. 考虑局域响应介质^[22-25], 当相对介电函数 $\varepsilon(\mathbf{r}, \omega) = \varepsilon_R(\mathbf{r}', \omega) + i\varepsilon_I(\mathbf{r}', \omega)$ 的实部和虚部满足Kramers-Kronig关系, 相对磁导率为1时, 电场算符可以表示为:

$$\begin{aligned} \hat{\mathbf{E}}(\mathbf{r}, \omega) &= i\sqrt{\frac{\hbar}{\pi\varepsilon_0}} \int d^3r' \sqrt{\varepsilon_I(\mathbf{r}', \omega)} \mathbf{G}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega) \\ &\quad \cdot \hat{\mathbf{f}}(\mathbf{r}', \omega), \\ \hat{\mathbf{E}}^\dagger(\mathbf{r}, \omega) &= -i\sqrt{\frac{\hbar}{\pi\varepsilon_0}} \int d^3r' \sqrt{\varepsilon_I(\mathbf{r}', \omega)} \\ &\quad \cdot \mathbf{G}^*(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega) \cdot \hat{\mathbf{f}}^\dagger(\mathbf{r}', \omega), \quad (2) \end{aligned}$$

其中, ε_0 为真空介电常数, 光子并矢格林函数 $\mathbf{G}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega)$ 满足^[26,27]:

$$\begin{aligned} \nabla \times \nabla \times \mathbf{G}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega) - \varepsilon(\mathbf{r}, \omega) \frac{\omega^2}{c^2} \mathbf{G}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega) \\ = \frac{\omega^2}{c^2} \mathbf{I} \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}'), \quad (3) \end{aligned}$$

\mathbf{I} 为单位并矢.

假设原子初始时刻处于激发态, 由于旋波近似, 系统的粒子数守恒, 系统相关的态 $|a\rangle$ 和 $|b(\mathbf{r}, \omega)\rangle$ 分别为: $|a\rangle = |e, 0\rangle$ 和 $|b(\mathbf{r}, \omega)\rangle = |g\rangle \hat{\mathbf{f}}^\dagger(\mathbf{r}, \omega)|0\rangle$. 则系统状态可写为

$$\begin{aligned} |\Psi(t)\rangle &= a(t)|a\rangle + \int_0^\infty d\omega \int d^3r b(\mathbf{r}, \omega, t) |b(\mathbf{r}, \omega)\rangle \\ &\equiv U(t)|a\rangle. \end{aligned}$$

为求解 $a(t) = \langle a|U(t)|a\rangle$, 可利用投影算符方法^[37,38]. 利用推迟超前格林函数 $G^\pm(\omega) = \lim_{\eta \rightarrow 0^+} G(z = \omega \pm i\eta)$, 其中, $G(z) = (z - H/\hbar)^{-1}$, 则时间演化算符为

$$U(t) = \frac{1}{2\pi i} \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega [G^-(\omega) - G^+(\omega)] \exp(-i\omega t).$$

定义投影算符 $P = |a\rangle\langle a|$ 及其补空间投影算符 $Q = I - P$, 其中 I 为恒等算子, 根据恒等式 $(z - H/\hbar)G(z) = I$, 可得:

$$PG(z)P = \hbar \frac{P}{\hbar z - PH_0P - \hbar PR(z)P}, \quad (4)$$

$$\hbar R(z) = H_1 + H_1 \frac{Q}{\hbar z - QH_0Q - QH_1Q} H_1. \quad (5)$$

由方程(4)可得格林函数矩阵元 $G_{aa}(z) = \langle a|G(z)|a \rangle = 1/(z - \omega_0 - R_{aa}(z))$, 其中 $R_{aa}(z) = \langle a|R(z)|a \rangle$. 依据格林函数理论, 格林函数的奇点, 即方程 $z - \omega_0 - R_{aa}(z) = 0$ 的解为系统的本征值, 其实部对应着系统能级, 虚部对应着衰减快慢. 将电场的表达式((2)式)代入(1)式, 利用(5)式, 则能移算符矩阵元为: $R_{aa}^\pm(\omega) \equiv \lim_{\eta \rightarrow 0^+} \langle a|R(z = \omega \pm i\eta)|a \rangle = \Delta(\mathbf{r}_0, \omega) \pm \Gamma(\mathbf{r}_0, \omega)/2$. 经过进一步的推导, 可得:

$$\Gamma(\mathbf{r}; \omega) = \frac{2d^2 \Im[\mathbf{n} \cdot \mathbf{G}(\mathbf{r}; \mathbf{r}; \omega) \cdot \mathbf{n}]}{\hbar \varepsilon_0}, \quad (6)$$

$$\Delta(\mathbf{r}; \omega) = -\frac{d^2 \Re[\mathbf{n} \cdot \mathbf{G}(\mathbf{r}; \mathbf{r}; \omega) \cdot \mathbf{n}]}{\hbar \varepsilon_0} + \frac{d^2 \omega}{\hbar \varepsilon_0} \int_0^{+\infty} d\xi \frac{\mathbf{n} \cdot \mathbf{G}(\mathbf{r}; \mathbf{r}; i\xi) \cdot \mathbf{n}}{\omega^2 + \xi^2}, \quad (7)$$

其中, \Im 和 \Re 分别表示虚部和实部, d 和 \mathbf{n} 仍然为(1)式中跃迁偶极矩阵元 $\mathbf{d} = d\mathbf{n}$ 的大小和单位方向矢量.

在弱耦合情况下, 即 $\Gamma(\mathbf{r}; \omega)$ 和 $\Delta(\mathbf{r}; \omega)$ 远小于原子的跃迁频率 ω_0 , 且是频率的缓变函数时, $\Gamma(\mathbf{r}; \omega)$ 和 $\Delta(\mathbf{r}; \omega)$ 可近似为 $\Gamma = \Gamma(\mathbf{r}; \omega_0)$ 和 $\Delta = \Delta(\mathbf{r}; \omega_0)$, 此时, 时间演化算符矩阵元为,

$$U_{aa}(t) = \lim_{\eta \rightarrow 0^+} \frac{1}{\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega \frac{(\Gamma/2 + \eta)}{(\omega - \omega_0 - \Delta)^2 + (\Gamma/2 + \eta)^2} \times \exp(-i\omega t).$$

此时, Γ 和 Δ 表示自发辐射率和能级移动. 本文称 $\Gamma(\mathbf{r}; \omega)$ 和 $\Delta(\mathbf{r}; \omega)$ 为自发辐射率和能级移动.

值得注意的是, 能级移动公式(7)中第二项非常小, 本文主要考虑第一项, 即

$$\Delta(\mathbf{r}; \omega) = -\frac{d^2 \Re[\mathbf{n} \cdot \mathbf{G}(\mathbf{r}; \mathbf{r}; \omega) \cdot \mathbf{n}]}{\hbar \varepsilon_0}, \quad (8)$$

此时, 自发辐射率和能级移动的表达式与文献[26, 27]一致. (6)式和(8)式是本节的主要结果, 下节将说明其中的格林函数需用重整化的表达式代替.

2.2 并矢格林函数的重整化及其有限元计算

2.2.1 并矢格林函数的重整化及其与自发辐射率和能级移动的关系

本小节主要目的是阐明自发辐射率((6)式)中的并矢格林函数需用其重整化的表达式, 而能级移动((8)式)中的并矢格林函数需用重整化的散射格林函数代替, 下面我们具体说明.

依电磁理论, 并矢格林函数可用点电偶极子的辐射场表示. \mathbf{r}_0 处点电偶极子 $\mathbf{P} = \mathbf{d}\delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_0)$ 在 \mathbf{r} 处的场为

$$\begin{aligned} \mathbf{E}(\mathbf{r}; \omega) &= \frac{1}{\varepsilon_0} \int_V [\mathbf{G}(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; \omega)] \cdot \mathbf{P}(\mathbf{r}'; \omega) dV' \\ &= \frac{\mathbf{G}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0; \omega) \cdot \mathbf{d}}{\varepsilon_0}, \end{aligned} \quad (9)$$

点电偶极子处的场 $\mathbf{E}(\mathbf{r}_0; \omega) = \lim_{\mathbf{r} \rightarrow \mathbf{r}_0} \mathbf{E}(\mathbf{r}; \omega) = \mathbf{G}(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_0; \omega) \cdot \mathbf{d}/\varepsilon_0$ 是发散的, 因此 $\mathbf{G}(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_0; \omega)$ 是发散的. 具体而言, 在无耗介质中, 格林函数的实部 $\Re[\mathbf{n} \cdot \mathbf{G}(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_0; \omega) \cdot \mathbf{n}]$ 是发散的, 另外, 当量子点的位置 \mathbf{r}_0 处于有耗介质中, 格林函数的实部 $\Re[\mathbf{n} \cdot \mathbf{G}(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_0; \omega) \cdot \mathbf{n}]$ 和虚部 $\Im[\mathbf{n} \cdot \mathbf{G}(\mathbf{r}; \mathbf{r}; \omega) \cdot \mathbf{n}]$ 均是发散的[35], 这将导致不符合物理的能级移动和自发辐射率.

为解决以上发散问题, 可采用实腔模型, 即用一个无耗的小体积 ΔV (理论上通常为球形或者小立方体) 表示量子点所在的区域, 其相对介电常数为 ε_B , 量子点的跃迁偶极矩位于该小体积的中心 \mathbf{r}_0 , 用重整化的电场, 即 ΔV 中平均局域场表示量子点所感受到的场[35].

$$\mathbf{E}^{\text{reg}}(\mathbf{r}_0; \omega) \equiv \frac{1}{\Delta V} \int_{\Delta V} \mathbf{E}(\mathbf{r}; \omega) d\mathbf{r}. \quad (10)$$

类似于文献[36]的处理, 设 \mathbf{r}_0 处 ΔV 内的极化强度为 $\mathbf{P}(\mathbf{r}; \omega)$, 则 ΔV 内 \mathbf{r} 处的电场可用散射格林函数 $\mathbf{G}_{\text{scatt}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; \omega)$ 和均匀空间格林函数 $\mathbf{G}_{\text{hom}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; \omega)$ 表达为

$$\begin{aligned} \mathbf{E}(\mathbf{r}; \omega) &= \frac{1}{\varepsilon_0} \left[\int_{\Delta V} \mathbf{G}_{\text{scatt}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; \omega) \cdot \mathbf{P}(\mathbf{r}'; \omega) dV' \right. \\ &\quad \left. + \lim_{V_\delta \rightarrow 0} \int_{\Delta V - V_\delta} \mathbf{G}_{\text{hom}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; \omega) \cdot \mathbf{P}(\mathbf{r}'; \omega) dV' \right. \\ &\quad \left. - \frac{\mathbf{L} \cdot \mathbf{P}(\mathbf{r}; \omega)}{\varepsilon_B} \right], \end{aligned} \quad (11)$$

其中 V_δ 为 \mathbf{r}' 处一个无限小的体积元, 且对于立方型或者球形体积 ΔV [28],

$$\mathbf{L} = \mathbf{I}/3. \quad (12)$$

由于散射格林函数是空间的缓变函数, (11) 式中 $\mathbf{G}_{\text{scatt}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; \omega) \approx \mathbf{G}_{\text{scatt}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0; \omega)$, 利用此关系, 并将 (11) 式代入 (10) 式, 则电场在 ΔV 内的平均值, 即重整化电场变为

$$\mathbf{E}^{\text{reg}}(\mathbf{r}_0; \omega) = \frac{\mathbf{G}_{\text{scatt}}^{\text{reg}}(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_0; \omega) \cdot \mathbf{d}}{\varepsilon_0} + \frac{\mathbf{M} \cdot \mathbf{d}}{\varepsilon_0 \Delta V} - \frac{\mathbf{L} \cdot \mathbf{d}}{\varepsilon_0 \varepsilon_B \Delta V}, \quad (13)$$

其中, \mathbf{d} 为 ΔV 内的偶极矩, $\mathbf{d} = \int_{\Delta V} \mathbf{P}(\mathbf{r}; \omega) d\mathbf{r}$. 重整化的散射格林函数为

$$\begin{aligned} \mathbf{G}_{\text{scatt}}^{\text{reg}}(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_0; \omega) \\ = \frac{1}{\Delta V} \int_{\Delta V} \mathbf{G}_{\text{scatt}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0; \omega) dV. \end{aligned} \quad (14)$$

对于半径为 a 的球形体积 $\Delta V = 4\pi a^3/3$, 波数 $k = \sqrt{\varepsilon_B} \omega/c$, 则 \mathbf{M} 为 [36]:

$$\mathbf{M} = \frac{2}{3\varepsilon_B} [[1 - ika] e^{ika} - 1] \mathbf{I}. \quad (15)$$

定义重整化的格林函数:

$$\begin{aligned} \mathbf{G}^{\text{reg}}(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_0; \omega) \\ = \mathbf{G}_{\text{scatt}}^{\text{reg}}(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_0; \omega) + \frac{\mathbf{M}}{\Delta V} - \frac{\mathbf{L}}{\varepsilon_B \Delta V}, \end{aligned} \quad (16)$$

则 (13) 式, 即重整化的电场也可写为

$$\mathbf{E}^{\text{reg}}(\mathbf{r}_0; \omega) = \frac{\mathbf{G}^{\text{reg}}(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_0; \omega) \cdot \mathbf{d}}{\varepsilon_0}. \quad (17)$$

由 (11) 式可知, 偶极子的辐射场为散射场和均匀空间辐射场的和, 其中第一项代表散射场, 第二和第三项代表均匀空间的辐射场. 重整化后, 即 (13) 式中的第一项为重整化的散射场, 可写为

$$\mathbf{E}_s^{\text{reg}}(\mathbf{r}_0; \omega) = \frac{\mathbf{G}_{\text{scatt}}^{\text{reg}}(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_0; \omega) \cdot \mathbf{d}}{\varepsilon_0}, \quad (18)$$

第二和第三项为重整化的均匀空间辐射场, 可写为

$$\mathbf{E}_0^{\text{reg}}(\mathbf{r}_0; \omega) = \frac{\mathbf{G}_0^{\text{reg}}(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_0; \omega) \cdot \mathbf{d}}{\varepsilon_0}, \quad (19)$$

其中, 重整化均匀空间格林函数为

$$\mathbf{G}_0^{\text{reg}}(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_0; \omega) = \frac{\mathbf{M}}{\Delta V} - \frac{\mathbf{L}}{\varepsilon_B \Delta V}. \quad (20)$$

由 (17)–(19) 式, 利用 $\mathbf{d} = d\mathbf{n}$, 重整化的电场与重整化的格林函数分量只相差系数, 因此, 本文

不特别指明的情况下, 重整化的电场和重整化的格林函数具有相同的意义.

对比电场的重整化形式 ((17) 式) 和未重整化的形式 ((9) 式), 由于原子感受到的场需由重整化的场替换 (此时作用于点电偶极子的辐射反作用场为 $E_{\text{RR}} = i\Im[\mathbf{G}^{\text{reg}}(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_0; \omega)] \cdot \mathbf{d}/\varepsilon_0$, 该场阻碍偶极子的振荡, 详细解释请参阅文献 [34]), 则自发辐射率中的格林函数应当采用重整化的格林函数. 此时, (6) 式变为

$$\Gamma(\mathbf{r}_0; \omega) = \frac{2d^2 \Im[\mathbf{n} \cdot \mathbf{G}^{\text{reg}}(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_0; \omega) \cdot \mathbf{n}]}{\hbar \varepsilon_0}, \quad (21)$$

与文献 [35] 一致.

对于能级移动, 通常将均匀空间的贡献归结于量子点的跃迁频率 (均匀空间中的能级移动可解析处理, 详细处理方法见文献 [3]), 本文只考虑散射场的存在对能级移动的影响. 此时, (8) 式变为

$$\Delta(\mathbf{r}_0; \omega) = -\frac{d^2 \Re[\mathbf{n} \cdot \mathbf{G}_{\text{scatt}}^{\text{reg}}(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_0; \omega) \cdot \mathbf{n}]}{\hbar \varepsilon_0}. \quad (22)$$

(21) 和 (22) 式是计算自发辐射率和能级移动的一般表达.

2.2.2 有限元方法及其在重整化并矢格林函数计算中的应用

由 (17) 式可知, $\mathbf{G}^{\text{reg}}(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_0; \omega)$ 可通过重整化的偶极子辐射场 $\mathbf{E}^{\text{reg}}(\mathbf{r}_0; \omega)$ 得到. 具体的计算流程如下: 首先求解 \mathbf{r}_0 处以频率 ω 沿 \mathbf{n} 方向振荡的点电偶极子 $\mathbf{P} = d\mathbf{n}\delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_0)$ 所产生的辐射场 $\mathbf{E}(\mathbf{r}; \omega)$, 随后求该辐射场 $\mathbf{E}(\mathbf{r}; \omega)$ 在 ΔV 内的平均值, 即计算重整化的电场 $\mathbf{E}^{\text{reg}}(\mathbf{r}_0; \omega)$ ((10) 式), 进一步, 由 (17) 式可得重整化格林函数

$$\mathbf{G}^{\text{reg}}(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_0; \omega) \cdot \mathbf{n} = \varepsilon_0 \mathbf{E}^{\text{reg}}(\mathbf{r}_0; \omega)/d,$$

由 (16) 式可得重整化的散射格林函数

$$\mathbf{G}_{\text{scatt}}^{\text{reg}}(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_0; \omega) = \mathbf{G}^{\text{reg}}(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_0; \omega) - \frac{\mathbf{M}}{\Delta V} + \frac{\mathbf{L}}{\varepsilon_B \Delta V},$$

其中, 对于球形 ΔV , \mathbf{M} 和 \mathbf{L} 的表达式见 (15) 和 (12) 式.

由以上可知, 计算 $\mathbf{G}^{\text{reg}}(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_0; \omega)$ 和 $\mathbf{G}_{\text{scatt}}^{\text{reg}}(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_0; \omega)$ 的关键是计算点电偶极子的辐射场及其在 ΔV 内的平均值. 因此, 原则上能计算点电偶极子重整化辐射场的数值方法均可用于计算重整化的格林函数和散射格林函数. 本文拟用有限元法计算, 下面简要介绍有限元算法以及利用基于有限元的 COMSOL Multiphysics 软件实现以上计算过程.

有限元方法是一种基于变分法的离散化数值技术, 在电磁场及纳米光子学领域具有广泛的应用^[39,40]. 文献^[41]详细介绍了有限元方法计算线电流源的辐射场, 为方便, 我们简要概括其要点. 依频率域麦克斯韦方程, 电流元 $\mathbf{J}(\mathbf{r}, \omega)$ 产生的辐射场 $\mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega)$ 满足:

$$\left[\nabla \times \frac{1}{\mu_r} \nabla \times - k_0^2 \varepsilon(\mathbf{r}) \right] \mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega) - i\omega\mu_0 \mathbf{J}(\mathbf{r}, \omega) = 0. \quad (23)$$

为仿真无限大的空间, 需将空间截断, 在边界处通常采用吸收边界条件, 使得电磁波入射到边界处无反射. 为此, 通常在计算边界外设定吸收区域(完全匹配层 PML), 通过设置特定的各向异性吸收材料或者采用复坐标系拉伸形式的波方程, 使得电磁波在该区域无反射地衰减.

依有限元理论, 对于任意试探函数 $\mathbf{F}(\mathbf{r}, \omega)$, 则方程(23)的解等价于求以下泛函的极值点,

$$L = \int_V \left[\nabla \times \frac{1}{\mu_r} \nabla \times - k_0^2 \varepsilon(\mathbf{r}) \right] \mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega) \times \mathbf{F}^*(\mathbf{r}, \omega) dV - \int_V i\omega\mu_0 \mathbf{J}(\mathbf{r}, \omega) \cdot \mathbf{F}^*(\mathbf{r}, \omega) dV. \quad (24)$$

由以上可知, 有限元方法解的是以上积分方程, 能处理数学上的点源情况, 即 $\mathbf{J}(\mathbf{r}, \omega) = \mathbf{n}\delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_0)$.

为求解方程(24), 将空间离散成连续的子域, 然后将解 $\mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega)$ 和试探函数 $\mathbf{F}(\mathbf{r}, \omega)$ 用子域上的局域矢量基函数 $\mathbf{N}_j(\mathbf{r})$ 做展开, 如:

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega) = \sum_{j=1}^N E_j \mathbf{N}_j(\mathbf{r}), \quad \mathbf{F}(\mathbf{r}, \omega) = \mathbf{N}_p(\mathbf{r}),$$

则方程(24)转换成线性方程组:

$$\sum_{k=1}^N M_{jk} E_k = b_j. \quad (25)$$

求解以上线性方程组, 可得电场展开系数 E_k , 进而得到原方程的解 $\mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega) = \sum_{j=1}^N E_j \mathbf{N}_j(\mathbf{r})$. 由于 $\mathbf{N}_j(\mathbf{r})$ 可选择高阶函数形式, 能较高精度地处理复杂的几何结构^[39-41], 使得有限元方法特别适用于纳米光子学领域.

利用基于有限元的 COMSOL Multiphysics^[42] 软件的射频模块, 以上利用有限元求解点电偶极子辐射场及其平均值的过程可方便实现. 该软件

提供了点电偶极子模块, 考虑长度为 $l_a (l_a \ll \lambda)$ 的线电流 \mathbf{I} , 其偶极矩为 $\mathbf{d} = -i\mathbf{I}l_a/\omega$ (注意, 软件采用时谐因子 $e^{i\omega t}$, 由 $\mathbf{J} = \partial\mathbf{P}/\partial t$ 可得极化强度 $\mathbf{P}(\mathbf{r}, \omega) = \mathbf{J}(\mathbf{r}, \omega)/i\omega$, 进而得到

$$\mathbf{d} = \int \mathbf{P}(\mathbf{r}, \omega) dV = \int \mathbf{J}(\mathbf{r}, \omega)/i\omega dV = -i\mathbf{I}l_a/\omega,$$

另外, 此时谐因子与之前理论部分所采用的时谐因子 $e^{-i\omega t}$ 不同, 因此, 解析计算时应取 $\mathbf{d} = i\mathbf{I}l_a/\omega$, 而且对于电场, 应当将软件所得到的场取复共轭, 以下软件计算所得的场均是指取复共轭后的结果), 点电偶极子是长度 l_a 趋近于 0 而保持 \mathbf{I} 和 l_a 的乘积不变的极限情况, 在仿真过程设 $\mathbf{I}l_a = 1 \text{ A}\cdot\text{m}$, 此时由 $\int \mathbf{J}(\mathbf{r}, \omega) dV = \mathbf{I}l_a$ 可知, 电流密度可写为 $\mathbf{J}(\mathbf{r}, \omega) = \mathbf{n}\delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_0)$, 则极化强度为 $\mathbf{P}(\mathbf{r}, \omega) = \mathbf{J}(\mathbf{r}, \omega)/i\omega = \mathbf{n}\delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_0)/i\omega$. 另外, 该软件还提供了 PML 吸收边界处理模块, 可仿真无限大空间. 更重要的是软件也提供了方便的网格剖分方式以及灵活的基函数类型. 文献^[43]所提供的模型文件详细展示了利用 COMSOL Multiphysics 软件计算点电偶极子的辐射场.

综上所述, 利用有限元计算重整化格林函数和重整化散射格林函数的计算步骤分为以下四步: 1) 设点电偶极子沿 \mathbf{n} 方向, 利用类似于文献^[43]的方法计算辐射场; 2) 将偶极子的辐射场在以点偶极子为中心, 半径为 a 的小球体内做积分得到重整化的辐射场; 3) 利用(17)式得到重整化的格林函数分量; 4) 利用(16)式将重整化格林函数减去解析的重整化均匀空间格林函数, 得到重整化的散射格林函数分量.

2.2.3 算法验证——均匀空间及金属纳米球系统

为证实以上重整化格林函数的有限元计算方法的可靠性, 首先研究重整化格林函数有解析解的真空情况. 依 2.2.2 小节计算步骤可知, 计算重整化格林函数的关键在于计算点电偶极子的辐射场. 为简便, 设点电偶极子处于坐标原点, 其极化方向沿着 z 方向, 考虑对称性, 计算区域可选为球的四分之一(尽管此处情况可利用二维旋转轴对称性的求解方法, 为不失一般性, 本文仍然用三维模型计算; 另外由于对称性, 实际的偶极矩为软件设定的偶极矩的四倍, 因此在利用软件计算时, 点电偶极子的强度设为 $\mathbf{I}l_a = 0.25 \text{ A}\cdot\text{m}$). 详细计算过程如下:

1) 建模及求解域剖分, 建立如图 1 所示的计算空间, 设中心处点电偶极子振荡频率为 $\omega = 2.75 \text{ eV}$ (此处及以后用 ω 表示 $\hbar\omega$), 中间蓝色网格密集区域为重整化的小球体, 其半径为 a (采用四面体网格剖分, 网格尺寸设定见表 1 计算说明), 中间空气层的厚度为波长 λ (采用四面体网格剖分, 最大网格尺寸为 $\lambda/10$), 最外层为 PML 吸收边界层, 其厚度为 0.25λ (采用 10 层扫掠网格), 用以截断无限大的空间; 2) 设定材料参数及边界条件, 根据情况设定求解域中的材料介电函数, 在 xz 和 yz 截面上采用完美磁导体边界条件. 通过 COMSOL Mutiphysics 求解, 可得到点电偶极子辐射场在空间的分布, 将其在偶极子源附近小球体内做平均, 可得重整化的辐射场.

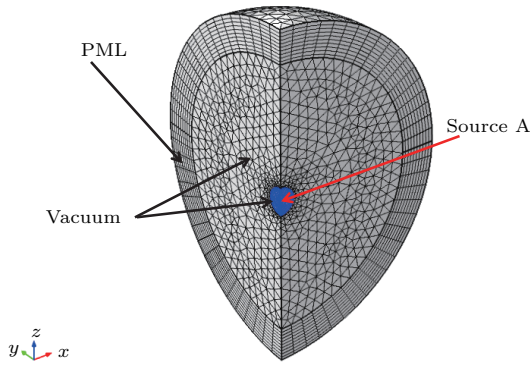


图 1 真空重整化格林函数有限元计算模型图 利用对称性, 只仿真四分之一球, xz 和 yz 截面上采用完美磁导体边界条件, 点电偶极子源处于球心处, 中间网格加密蓝色区域为重整化区域, 在该区域中, 我们考虑两种不同的网格尺寸

Fig. 1. Models for calculating the renormalized Green's function in vacuum. The simulation domain is reduced to one quarter for symmetry consideration. The point dipole source located at the center is thought to be polarized along the z -axis. Perfect match layer (PML) is used to truncate the infinite space and perfect magnetic conductor conditions are used in the xz and yz planes. There is a small sphere region which is used to renormalizing the radiation field.

在偶极子源附近, 即重整化区域内, 采用两种不同的网格尺寸: 一般网格精度(最大网格尺寸为 0.4 nm)和精细网格精度(最大网格尺寸为 0.05 nm). 偶极子处的辐射场的 z 方向分量 E_z 实部和虚部如表 1 的第 1 列和第 2 列所示, 发现源点处的偶极子辐射场虚部强烈地依赖于网格, 源点处网

格尺寸变小时, E_z 虚部由 $-5.7563 \times 10^{24} \text{ V/m}$ 变为 $-7.3745 \times 10^{26} \text{ V/m}$, 有两个数量级的变化(见表 1 第 2 列数据), E_z 实部几乎不变. 通过仿真, 当我们进一步减小源点附近的网格尺寸时, 辐射场虚部变得越来越大, 而其实部变化很小, 暗含着源点处辐射场的虚部发散; 当网格过于密集(例如, 小于 0.001 nm)时, 不能得到收敛的结果. 这主要是由于辐射场的虚部对应格林函数的实部(见 (9) 式, 其中偶极矩为 $\mathbf{d} = i\mathbf{I}l_a/\omega$), 而当源点和场点在同一位置时, 均匀空间格林函数的实部是发散的. 综上所述可知, 有限元计算得到的点电偶极子的辐射场依赖于计算过程中设定的网格尺寸, 其值不具有确定的意义.

考虑重整化, 即对以上电场在以偶极子为中心、半径为 a 的小球体内做平均, 当 $a = 1 \text{ nm}$, $E_z^{\text{reg}}(\mathbf{r}_0; \omega)$ 的计算结果如表 1 的第 3 和第 4 列所示, 发现重整化的辐射场实部与未重整化情况几乎没有差别, 更重要的是其虚部不再随网格尺寸的改变而变化, 获得收敛的结果(见表 1 第 4 列).

为将以上收敛结果与解析解相比较, 利用 (19) 式, 其中 $\mathbf{G}_0^{\text{reg}}(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_0; \omega)$ ((20) 式) 中的 \mathbf{M} 和 \mathbf{L} 见 (15) 和 (12) 式, 在以上参数即 $a = 1 \text{ nm}$ 和偶极矩 $\mathbf{d} = i\mathbf{I}l_a/\omega$ 情况下, 得到重整化电场解析解的实部和虚部分别为 $(-3.8813 \times 10^{15} \text{ V/m})$ 和 $(-2.1508 \times 10^{21} \text{ V/m})$, 发现解析结果与有限元结果(表 1 第 3 和第 4 列)符合得非常好, 误差在千分之三以内. 以上结果表明, 有限元能计算均匀空间中的重整化电场(即重整化的格林函数).

下面, 考虑不同的半径 a ($0.05\text{--}1 \text{ nm}$), 重整化电场实部和虚部分别如图 2(a) 和图 2(b) 所示, 黑色实线表示解析解((19) 式, 其中 $\mathbf{G}_0^{\text{reg}}(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_0; \omega)$ ((20) 式) 中的 \mathbf{M} 和 \mathbf{L} 见 (15) 和 (12) 式), 红色空心圆圈表示有限元结果((10) 式, 其中 $\mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega)$ 由有限元软件计算得到). 我们发现: 有限元法的数值结果与解析解符合得很好. 为展示有限元结果与解析解的差别, 在插图中展示了相对误差, 即用数值解与解析解的差除以解析解, 发现辐射场实部的相对误差小于 0.004% , 虚部的相对误差在 0.3% 左右, 进一步证实有限元方法能处理均匀空间中并矢格林函数的重整化问题.

表1 真空中点电偶极子的辐射场: 1, 2列为不重整化的有限元结果; 3, 4列为重整化的结果(依(10)式计算), 其中 $\omega = 2.75$ eV, $a = 1$ nm

Table 1. Radiation field of point electric dipole in homogeneous space. Results are obtained by finite element method with perfect matched layer (COMSOL Multiphysics software). Around the dipole source, two different levels of mesh size are used, for example finer mesh grid and general mesh grid. The first two columns are for electric fields at the dipole location and the last two columns are the renormalized ones over a sphere with radius $a = 1$ nm. The real (imaginary) part of the radiation field corresponds to the imaginary (real) part of the Green function. Here, $\omega = 2.75$ eV and the dipole strength is $d = 1$ [A·m]/j ω .

网格精细程度	不重整化		重整化	
	Real(E_z)/V·m ⁻¹	Imag(E_z)/V·m ⁻¹	Real(E_z)/V·m ⁻¹	Imag(E_z)/V·m ⁻¹
一般网格	-3.8930 × 10 ¹⁵	-5.7563 × 10 ²⁴	-3.8928 × 10 ¹⁵	-2.1505 × 10 ²¹
精细网格	-3.8930 × 10 ¹⁵	-7.3745 × 10 ²⁶	-3.8928 × 10 ¹⁵	-2.1507 × 10 ²¹

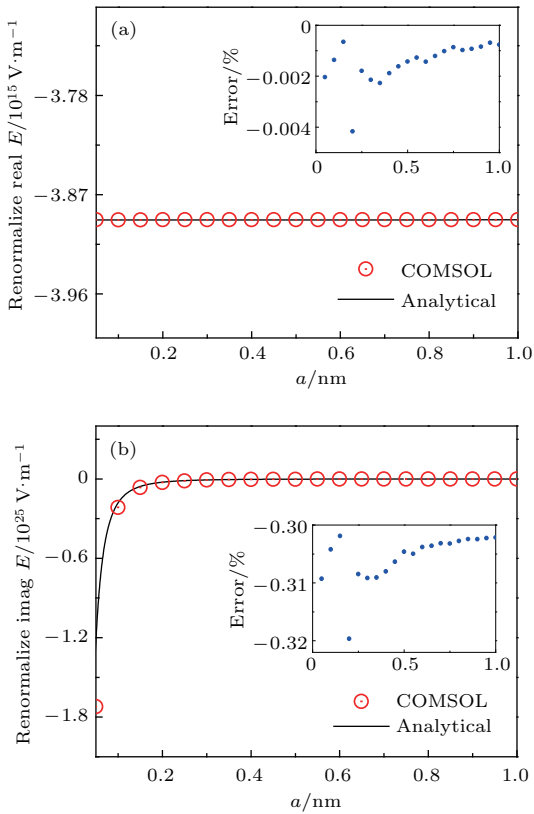


图2 均匀空间中重整化的点电偶极子辐射场 红色空心圆圈表示有限元结果((10)式), 黑色实线为解析解((19)式), 插图为数值解与解析解的相对误差, 对于不同的量子点半径 a , 发现有限元结果与解析解符合得很好

Fig. 2. Renormalized radiation field of electric point dipole in vacuum. Red circle are for our Finite Element method (Eq. (10)) and black solid line represents analytical results (Eq. (19)). It's found that results by Finite Element method agree well with the analytical ones for different quantum dot sizes.

接下来, 展示我们的算法在重整化散射格林函数求解中的应用. 量子点位于一个银纳米球外, 模型如图3所示. 设背景为真空, 其介电常数 $\epsilon_1 = 1$, 银的介电常数由Drude模型给出[26,27],

即: $\epsilon_2(\omega) = \epsilon_\infty - \omega_p^2/(\omega^2 - i\gamma\omega)$, 在这里 $\epsilon_\infty = 6$, $\omega_p = 7.89$ eV, $\gamma = 0.051$ eV, 设银纳米球半径 $r_a = 20$ nm, 量子点距离银纳米球表面为 $l = 2$ nm, 偶极矩方向沿着纳米球的径向, 重整化体积仍然用半径为 a 的球体表示.

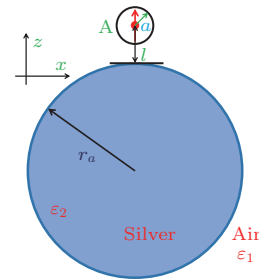


图3 纳米球系统中重整化格林函数的仿真示意图 量子点‘A’在银纳米球附近, 考虑量子点的实际大小, 用半径为 a 的小球代替, 量子点的中心距离球表面为 l , 设跃迁偶极矩的极化方向沿着银纳米球的径向; 银纳米球半径设为 $r_a = 20$ nm, ϵ_1 和 ϵ_2 分别是空气的和银的介电常数

Fig. 3. Model of nano-sphere system used to calculate the renormalized Green function. A quantum dot ‘A’ is placed near a silver nano-sphere, where a represents the radius of the quantum dot and l is its center to the surface of silver nano-sphere. For simplicity, the transition dipole moment is set to be polarized along the radial direction of the nano-sphere and the radius of the nanosphere is $r_a = 20$ nm. The relative permittivity for air and silver are $\epsilon_1 = 1$ and $\epsilon_2(\omega) = \epsilon_\infty - \omega_p^2/(\omega^2 - i\gamma\omega)$ with $\epsilon_\infty = 6$, $\omega_p = 7.89$ eV, $\gamma = 0.051$ eV, respectively.

计算结果如图4(a)和图4(b)所示. 黑色实线描述的是解析的点电偶极子的散射场(解析散射格林函数见文献[26, 27]), 红色空心圆圈描述的是本文提出的有限元方法得到的点电偶极子的重整化散射场. 其求解步骤为: 首先求点电偶极子的辐射场 $\mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega)$, 利用(10)式将其重整

化, 得到 $\mathbf{E}^{\text{reg}}(\mathbf{r}_0; \omega)$, 再利用 (17) 式得到重整化的格林函数 $\mathbf{G}^{\text{reg}}(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_0; \omega)$, 随后利用 (18) 式 (其中, $\mathbf{G}_{\text{scatt}}^{\text{reg}}(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_0; \omega)$ 由 (16) 式即

$$\mathbf{G}_{\text{scatt}}^{\text{reg}}(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_0; \omega) = \mathbf{G}^{\text{reg}}(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_0; \omega) - \frac{\mathbf{M}}{\Delta V} + \frac{\mathbf{L}}{\varepsilon_B \Delta V}$$

表示), 我们得到重整化的散射场 $\mathbf{E}_s^{\text{reg}}(\mathbf{r}_0; \omega)$. 结果表明, 即使在量子点离金属纳米结构表面距离很近且重整化体积较大 (如半径为 $a = 1 \text{ nm}$) 时, 重整化散射格林函数与解析散射格林函数仍然符合得很好, 这证实散射格林函数是空间的缓变函数, 重整化散射格林函数与量子点中心处的散射格林函数相等. 因此, 通过数值计算, 证实有限元法能够准确计算重整化散射格林函数.

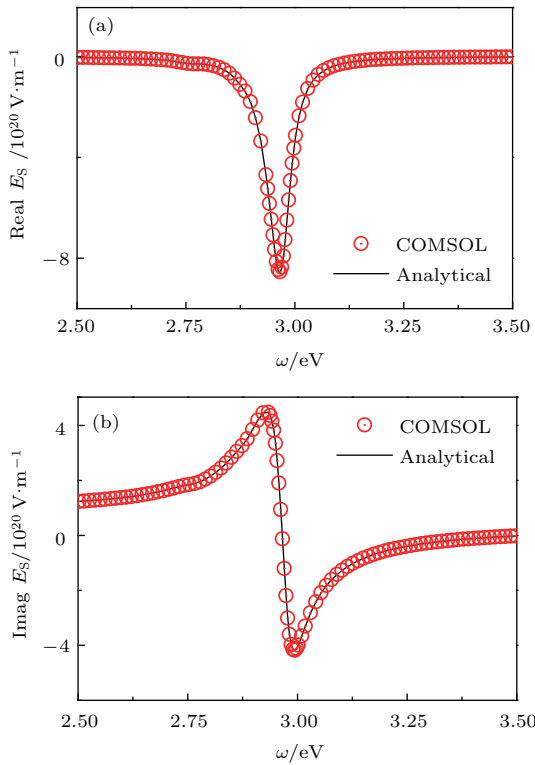


图4 纳米球系统中的散射场 黑色实线描述解析的点电偶极子的散射场, 可通过解析散射格林函数或者利用有结构和无结构情况下两次有限元仿真的差值得到 [26]; 红色空心圆圈代表本文的一次有限元仿真得到的点电偶极子的重整化散射场, 其中, $a = 1 \text{ nm}$; 可以看到重整化散射场与量子点中心处的散射场符合得很好

Fig. 4. Scattering field of point electric dipole in nano-sphere system. The black solid line is for the analytical result, which is obtained by analytical scattering Green function method or by the difference of two different finite element runs for every frequency point [26]. The red circles represent the renormalized scattering fields by this work. Here, the radius of the quantum is $a = 1 \text{ nm}$. We see that the renormalized scattering fields agree well with the scattering fields at the center of the quantum dot.

不同于我们最近的类似的工作 [26], 此方法只需要一次仿真, 通过计算重整化的电场, 得到重整化的格林函数, 将其减去解析的均匀空间的重整化格林函数, 能得到重整化的散射格林函数, 而之前的工作需要两次有限元仿真, 利用有结构和均匀空间两种情况下偶极子的辐射场的差得到散射场, 进而得到散射格林函数. 值得强调的是, 尽管有限元方法能准确计算偶极子的辐射场, 但是对每一个频率点, 解线性方程组 ((25) 式) 所需的计算资源较多 (例如: 对于本例所示的纳米球系统, 采用对称性后大约需要 40 GB 内存, 在我们的塔式工作站 “Intel (R) Xeon (R) E5-2697 v3” 上需 30 min 左右). 通过以上对比, 容易看到, 相比于之前的方法, 本方法不需计算均匀空间中的辐射场, 计算量约减小一半.

3 算法应用——球-平板纳米腔中的自发辐射和能级移动

综上所述, 采用点电偶极子源, 通过一次有限元仿真, 能精确处理格林函数和散射格林函数的重整化问题. 本节利用该方法, 研究球-平板表面等离激元纳米腔中自发辐射和能级移动问题 [23,44] 自发辐射和能级移动由 (21) 和 (22) 式表示. 图 5 是球-平板模型的示意图, 无限大的银平板上方有一个银纳米球, 其半径为 $r_a = 20 \text{ nm}$, 离银板的距离为 g , 量子点在银纳米球和银板的正中间, 其偶极矩设为 $24D \approx 0.5 \text{ e-nm}$, 设极化方向沿着垂直于银板的方向.

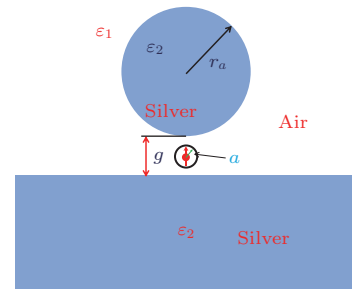


图5 球-平板纳米腔系统的原理图 $r_a = 20 \text{ nm}$ 的银纳米球置于无限大的银板上方, 银纳米球与银板之间的距离是 g , 量子点放在球和板的正中间, 量子点的极化方向沿着垂直于银平板表面的方向, 量子点的半径为 a

Fig. 5. Schematic diagram for the nano-cavity. A silver nano-sphere with radius $r_a = 20 \text{ nm}$ is above a silver planar. The gap between them is g . A quantum dot with radius a is placed at the center and is assumed to be polarized normal to the planar.

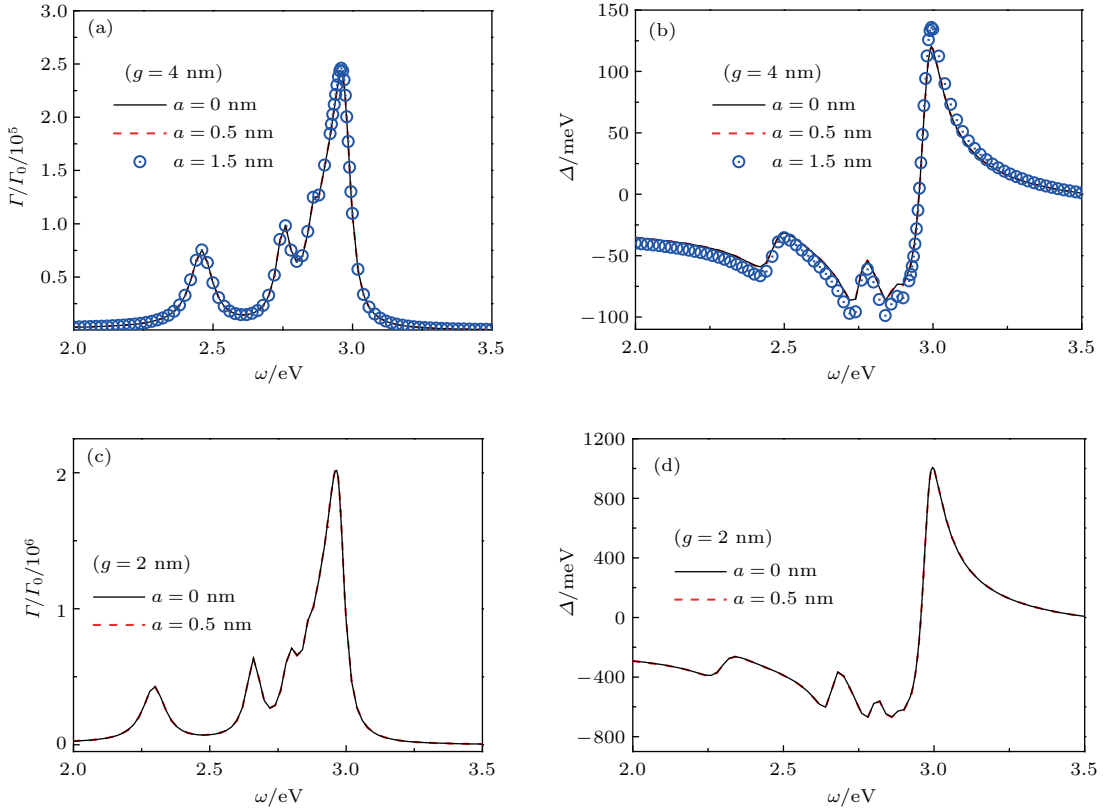


图6 球-平板纳米腔系统中的归一化自发辐射率和能级移动 考虑不同的量子点半径 a , 其中 $a = 0$ 对应利用散射格林函数的结果, $a \neq 0$ 对应利用重整化的散射格林函数的结果, (a) 和 (b) 为 $g = 4$ nm 的结果, (c) 和 (d) 为 $g = 2$ nm 的结果

Fig. 6. Spontaneous emission rate and the energy level shift of a quantum emitter in plasmonic gap nano-cavity. We consider different sizes of the quantum emitter. $a = 0$ represent the results by the method in Ref. [26]. Accordingly, results for $a \neq 0$ is by our renormalized scattering Green function method. (a) and (b) Are for large gap $g = 4$ nm, (c) and (d) are for a small gap $g = 2$ nm.

当球和平板间的间隙为 $g = 4$ nm 时, 自发辐射和能级移动分别见图 6(a) 和图 6(b). 我们考虑了三种不同的量子点半径, 其中黑色实线为量子点半径 $a = 0$ nm 时(即未采用重整化, 即文献 [26] 所示的通过两次仿真得到散射格林函数)的结果, 红色虚线(蓝色空心圆圈)为量子点半径 $a = 0.5$ nm ($a = 1.5$ nm) 时的结果. 我们发现: 当量子点体积较小时 ($a = 0.5$ nm), 其结果与利用严格散射场 ($a = 0$ nm 时表示未重整化) 得到的结果符合得很好, 此结论对于更小的球-平板距离情况下也适用 ($g = 2$ nm 情况见图 6(c) 和图 6(d)); 当量子点非常大时(半径 $a = 1.5$ nm), 体积对自发辐射和能级移动的影响仍然较小(对比图 6(a) 和图 6(b) 中蓝色空心圆圈与黑色实线). 这些结果表明, 量子点的体积对自发辐射和能级移动的影响较小. 另外, 类似于文献 [26], 我们也发现纳米腔的最低阶共振模式频率(偶极模式, 图 6(a) 和图 6(c) 的第一个峰所对应的频率)相对于单球

情况发生了红移, 且空隙距离越小, 红移越明显, 这一现象可通过模式杂化理论解释 [45]. 更重要的是, 我们发现了极大的自发辐射增强和能级移动, 例如, 当 $g = 2$ nm 时, 在偶极共振频率附近, 自发辐射率增强因子高达 $\Gamma/\Gamma_0 \approx 4.3 \times 10^5$, 能级移动可达 $\Delta \approx -320$ meV, 在高阶共振频率附近 ($\omega = 2.995$ eV), $\Gamma/\Gamma_0 \approx 2.02 \times 10^6$, $\Delta \approx 1000$ meV 此能级移动可与原子的跃迁频率相比拟, 不难想象, 由于 $\Delta \propto d^2$ ((22) 式), 进一步增大偶极矩的大小, 此能级移动能超越原子的跃迁频率, 能使系统进入超强耦合区域, 系统中可能会出现本征能量为负值的束缚态 [46].

4 结 论

本文提出了一种利用有限元计算重整化格林函数的方法. 该方法通过计算点电偶极子的辐射场, 并将其重整化, 得到重整化的格林函数, 减去均

匀空间重整化格林函数的解析解, 可求得重整化的散射格林函数. 应用该方法到均匀空间中, 数值解与解析解一致, 证明该方法能处理均匀空间中格林函数的重整化问题; 在纳米球系统中, 我们发现重整化散射格林函数与解析散射格林函数也一致, 证实该方法能处理散射格林函数的重整化问题. 相比于文献 [26] 所示的方法, 本方法约减小一半的计算量. 应用该方法到球-平板纳米腔系统中, 发现自发辐射和能级移动与量子点的体积关系不大, 因此, 利用我们的方法, 不需要精确的量子点的大小就能获知系统中自发辐射和能级移动的特性; 另外, 在此系统中, 我们发现了极大的自发辐射率的改变和能级移动, 例如, 当球离板很近 ($g = 2 \text{ nm}$) 时, 在高阶共振频率附近 ($\omega = 2.995 \text{ eV}$), 自发辐射增强因子 $\Gamma/\Gamma_0 \approx 2.02 \times 10^6$, 能级移动 $\Delta \approx 1000 \text{ meV}$.

参考文献

- [1] Berestetskii V B, Lifshitz E M, Pitaevskii L P 1982 *Quantum Electrodynamics* (2nd Ed.) (England: Butterworth-Heinemann) pp159–165
- [2] Tannoudji C C, Roc D J, Grynberg G 1997 *Photons and Atoms: Introduction to Quantum Electrodynamics* (New York: John Wiley & Sons) pp197–200
- [3] Milonni P W 1993 *The Quantum Vacuum: An Introduction to Quantum Electrodynamics* (San Diego: Academic Press) pp78–107
- [4] Wang X H, Wang R Z, Gu B Y, Yang G Z 2002 *Phys. Rev. Lett.* **88** 093902
- [5] Zhou Y S, Wang X H, Gu B Y, Wang F H 2006 *Phys. Rev. Lett.* **96** 103601
- [6] Wang X H, Gu B Y 2005 *Physics* **34** 18 (in Chinese) [王雪华, 顾本源 2005 物理 **34** 18]
- [7] Xing R, Xie S Y, Xu J P, Yang Y P 2014 *Acta Phys. Sin.* **63** 094205 (in Chinese) [邢容, 谢双媛, 许静平, 羊亚平 2014 物理学报 **63** 094205]
- [8] Xing R, Xie S Y, Xu J P, Yang Y P 2017 *Acta Phys. Sin.* **66** 014202 (in Chinese) [邢容, 谢双媛, 许静平, 羊亚平 2017 物理学报 **66** 014202]
- [9] Yang Y P, Zhu S Y 2000 *Phys. Rev. A* **61** 043809
- [10] Zhu S Y, Chen H, Huang H 1997 *Phys. Rev. Lett.* **79** 205
- [11] Xie S Y, Yang Y P, Lin Z X, Wu X 1999 *Acta Phys. Sin.* **48** 1459 (in Chinese) [谢双媛, 羊亚平, 林志新, 吴翔 1999 物理学报 **48** 1459]
- [12] Yang Y P, Lin Z X, Xie S Y, Feng W G, Wu X 1999 *Acta Phys. Sin.* **48** 603 (in Chinese) [羊亚平, 林志新, 谢双媛, 冯伟国, 吴翔 1999 物理学报 **48** 603]
- [13] Huang Y G, Chen G Y, Jin C J, Liu W M, Wang X H 2012 *Phys. Rev. A* **85** 053827
- [14] Kinkhabwala A, Yu Z F, Fan S H, Avlasevich Y, Müllen K, Moerner W E 2009 *Nature Photon.* **3** 654
- [15] Okamoto K, Niki I, Shvartsner A, Narukawa Y, Mukai T, Scherer A 2004 *Nature Mater.* **3** 601
- [16] Li M, Cushing S K, Wu N Q 2015 *Analyst* **140** 386
- [17] Taylor A B, Zijlstra P 2017 *ACS Sens.* **2** 1103
- [18] Lu Y J, Kim J, Chen H Y, Wu C, Dabidian N, Sanders C E, Wang C Y, Lu M Y, Li B H, Qiu X G, Chang W H, Chen L J, Shvets G, Shih C K, Gwo S J 2012 *Science* **337** 450
- [19] Khajavikhan M, Simic A, Katz M, Lee J H, Slutsky B, Mizrahi A, Lomakin V, Fainman Y 2012 *Nature* **482** 204
- [20] Xu H X, Bjerneld E J, Käll M, Börjesson L 1999 *Phys. Rev. Lett.* **83** 4357
- [21] Imada H, Miwa K, Imai-Imada M, Kawahara S, Kimura K, Kim Y 2017 *Phys. Rev. Lett.* **119** 013901
- [22] Liu R M, Zhou Z K, Yu Y C, Zhang T W, Wang H, Liu G H, Wei Y M, Chen H J, Wang X H 2017 *Phys. Rev. Lett.* **118** 237401
- [23] Zhang Y, Meng Q S, Zhang L, Luo Y, Yu Y J, Yang B, Zhang Y, Esteban R, Aizpurua J, Luo Y, Yang J L, Dong Z C, Hou J G 2017 *Nat. Commun.* **8** 15225
- [24] González-Tudela A, Huidobro P A, Martín-Moreno L, Tejedor C, García-Vidal F J 2014 *Phys. Rev. B* **89** 041402
- [25] Delga A, Feist J, Bravo-Abad J, Garcia-Vidal F J 2014 *Phys. Rev. Lett.* **112** 253601
- [26] Zhao Y J, Tian M, Wang X Y, Yang H, Zhao H P, Huang Y G 2018 *Opt. Express* **26** 1390
- [27] van Vlack C, Kristensen P T, Hughes S 2012 *Phys. Rev. B* **85** 075303
- [28] Yaghjian A D 1980 *Proc. IEEE* **68** 248
- [29] Huttner B, Barnett S M 1992 *Phys. Rev. A* **46** 4306
- [30] Scheel S, Knöll L, Welsch D G 1999 *Phys. Rev. A* **60** 4094
- [31] Scheel S, Knöll L, Welsch D G, Barnett S M 1999 *Phys. Rev. A* **60** 1590
- [32] de Vries P, van Coevorden D V, Legendijk A 1998 *Rev. Mod. Phys.* **70** 447
- [33] Dung H T, Buhmann S Y, Knöll L, Welsch D, Scheel S, Kästel J 2003 *Phys. Rev. A* **68** 043816
- [34] Chaumet P C, Sentenac A, Rahmani A 2004 *Phys. Rev. E* **70** 036606
- [35] van Vlack C, Hughes S 2012 *Opt. Lett.* **37** 2880
- [36] Martin O J F, Piller N B. 1998 *Phys. Rev. E* **58** 3909
- [37] Tannoudji C C, Roc D J, Grynberg G 1992 *Atom-Photon Interactions: Basic Processes and Applications* (New York: John Wiley & Sons) pp165–205
- [38] Agarwal G S 1974 *Quantum Statistical Theories of Spontaneous Emission and Their Relation to Other Approaches* (Berlin, Heidelberg: Springer) pp17–23
- [39] Jin J M 2014 *The Finite Element Method in Electromagnetics* (3rd Ed.) (New York: Wiley-IEEE Press) pp1–188
- [40] Benjamin G, Jérémy B, MartF, Olivier J 2015 *Laser Photon. Rev.* **9** 577
- [41] Chen Y T, Nielsen T R, Gregersen N, Lodahl P, Mørk J 2010 *Phys. Rev. B* **81** 125431

- [42] <https://www.comsol.com/>[2018-5-6] 2016 *Nature* **531** 623
- [43] Bai Q, Perrin M, Sauvan C, Hugonin J P, Lalanne P 2013 *Opt. Express* **21** 27371
- [44] Zhang Y, Luo Y, Zhang Y, Yu Y J, Kuang Y M, Zhang L, Meng Q S, Luo Y, Yang J L, Dong Z C, Hou J G 2011 *Chem. Rev.* **111** 3913
- [45] Halas N J, Lal S, Chang W S, Link S, Nordlander P 2011 *Chem. Rev.* **111** 3913
- [46] Yang C J, An J H 2017 *Phys. Rev. B* **95** 161408

Renormalization of photon dyadic Green function by finite element method and its applications in the study of spontaneous emission rate and energy level shift*

Zhao Yun-Jin¹⁾ Tian Meng¹⁾ Huang Yong-Gang^{1)†} Wang Xiao-Yun¹⁾
Yang Hong¹⁾ Mi Xian-Wu²⁾

1) (College of Physics, Mechanical and Electrical Engineering, Jishou University, Jishou 416000, China)

2) (College of Electrical and Information Engineering, Huaihua University, Huaihua 418000, China)

(Received 6 May 2018; revised manuscript received 19 July 2018)

Abstract

The spontaneous emission rate and the energy level shift of a quantum dot in any micro-nanostructures can be expressed by the classical dyadic Green's function. However, the real part of the dyadic Green's function is divergent, when the source point and the field point are at the same position. This leads to an unphysical divergent level shift. Theoretically, the dyadic Green's function can be decomposed into a homogeneous part and a scattering part. Traditionally, the homogeneous field contribution is introduced into the definition of the transition frequency and the only need is to consider the effect of the scattering part which is non-divergent. Another renormalization method is to average the Green tensor over the volume of the quantum dot. In this work, a finite element method is proposed to address this problem. The renormalized dyadic Green function is expressed by the averaged radiation field of a point dipole source over the quantum dot volume. For the vacuum case, numerical results of the renormalized Green tensor agree well with the analytical ones. For the nanosphere model, the renormalized scattering Green tensor, which is the difference between the renormalized Green tensor and the analytical renormalized one in homogeneous space, agrees well with the analytical scattering Green tensor in the center of the quantum dot. Both of the above models clearly demonstrate the validity and accuracy of our method. Compared with the previous scattering Green function method where two different finite element runs are needed for one frequency point, our renormalization method just needs one single run. This greatly reduces the computation burden. Applying the theory to a gap plasmonic nano-cavity, we find extremely large modifications for the spontaneous emission rate and the energy level shift which are independent of the size of the quantum dot. For frequency around the higher order mode of the nano-cavity, spontaneous emission enhancement is about $\Gamma/\Gamma_0 \approx 2.02 \times 10^6$ and the energy level shift is about $\Delta \approx 1000$ meV for a dipole moment 24D. These findings are instructive in the fields of quantum light-matter interactions.

Keywords: finite element method, renormalized Green function, spontaneous emission rate, energy level shift

PACS: 31.15.-p, 42.50.Pq, 42.50.Nn, 32.70.Jz

DOI: 10.7498/aps.67.20180898

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grants Nos. 11464014, 11347215, 11364020, 11564013, 11464013), the Natural Science Foundation of Hunan Province, China (Grant No. 2016JJ4073), and the Hunan Provincial Innovation Foundation for Postgraduate, China (Grant No. CX2017B718).

† Corresponding author. E-mail: huang122012@163.com