

# 利用腔内量子电动力学效应改变铈玻璃微球荧光谱特性的研究

吕宝龙 王育竹 黎永青 刘亚淑

(中国科学院上海光学精密机械研究所,量子光学(联合)开放实验室,上海 201800)

**摘 要** 报道腔内量子电动力学效应对铈玻璃微球荧光谱的影响;分析了光谱中量子电动力学结构的相对强度,同时估算了自发辐射速率的量子电动力学增强.实验证实增强幅度超过16倍.

**关键词** 腔内量子电动力学效应, 腔模, 尺寸参数.

## 1 引 言

腔内量子电动力学效应(QED)所研究的是电磁场的边界条件对原子辐射性质的影响<sup>[1]</sup>.放置在光学腔内的激发原子,其荧光是增强还是抑制取决于荧光波长是否与腔模共振. Purcell最早讨论了这种效应<sup>[2]</sup>,他发现共振时,腔内真空场模式密度的增加将使得腔内原子的自发辐射速率远超过自由空间中的值.增强幅度的表达式为  $\eta \simeq 3DQ\lambda^3/4\pi^2V_m$ <sup>[3]</sup>,其中  $D$  为腔模简并度,  $Q$  为腔模的品质因数,  $V_m$  为模体积.

直径在米氏范围的透明介质微球在本质上就是一种光学腔.这种腔具有很高的几何对称性,其模式的位置和场分布都可以用米氏理论严格计算<sup>[4]</sup>.腔内光场的反馈来自于腔与空气交界面的全内反,因此球体微腔一般具有较高的  $Q$  值.腔模又称为 MDR 模取决于微球的几何尺寸.如果定义腔的尺寸参数  $x = 2\pi a/\lambda$  ( $a$  为微球半径),则腔模对应分立的尺寸参数  $x_{n,\tau}$ ,其中  $n$  是描述腔内场分布的球贝塞尔函数的阶数,而  $\tau$  则代表腔模光场在径向分布的极大值的数目<sup>[5]</sup>.横电场模(TE)和横磁场模(TM)都存在于腔中.实验表明,含有染料的液滴微球的荧光谱与通常的染料宽带谱不同,出现了很尖锐的结构<sup>[6]</sup>.这些结构就是由于自发辐射在相应波长处的增强引起的.理论工作曾预言,介质液滴中自发辐射系数  $A$  可以得到1500倍的增强<sup>[1]</sup>.作者也曾报道过在铈玻璃微球腔中观察到的量子电动力学现象<sup>[7]</sup>.

本文着重研究腔内量子电动力学效应对铈玻璃微球荧光谱的影响,并对光谱中的共振结构的强度作了分析,同时估算了自发辐射的量子电动力学增强倍数.

## 2 实验装置与实验结果

实验中所用的铈玻璃球直径约几十微米,含有3%的  $\text{Nd}_2\text{O}_3$ .实验安排如图1所示,连续的氩离子 514.5 nm 激光束经透镜  $L_1$  聚焦后激发放置在平板玻璃上的铈玻璃微球,聚焦光斑

的直径约 10 μm. 激发位置由一个 40× 的显微镜监视. 为清晰起见, 从显微镜出来的影像投影到距显微镜 2 m 远的白纸屏幕上. 钕玻璃球发出的荧光由焦距为 3 cm 的透镜 L<sub>2</sub> 收集会聚到 0.5 m 光栅扫描光谱仪的入射狭缝上. 狭缝前的 HB<sub>9</sub> 滤光片滤掉 514.5 nm 的弹性散射光. 光谱仪的输出信号经光电倍增管放大后由记录仪记录或由计算机采集. 放置微球的玻璃薄板固定在二维调节架上, 所以微球与激发光束的相对位置可以精心

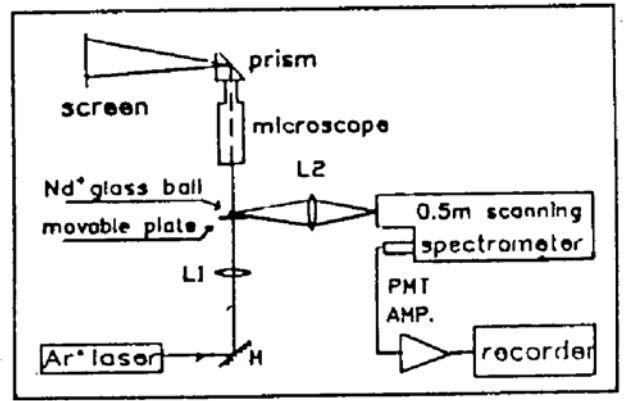


Fig. 1 Experiment arrangement

调节使激发光与微球之间有最佳的耦合. 实验选择了一个直径约 45 μm 的钕玻璃小球, 用 0.425 W 的氩离子激光激发其边缘, 并且扫描了它在 735~765 nm 范围内的荧光谱. 如图 2(a) 所示, 光谱中出现了尖峰结构. 结构下面的背景谱与大块钕玻璃的光谱一致. 作为比较, 也测试尺寸约几十微米的不规则钕玻璃粉末的荧光信号. 如图 2(b) 所示, 谱中没有结构.

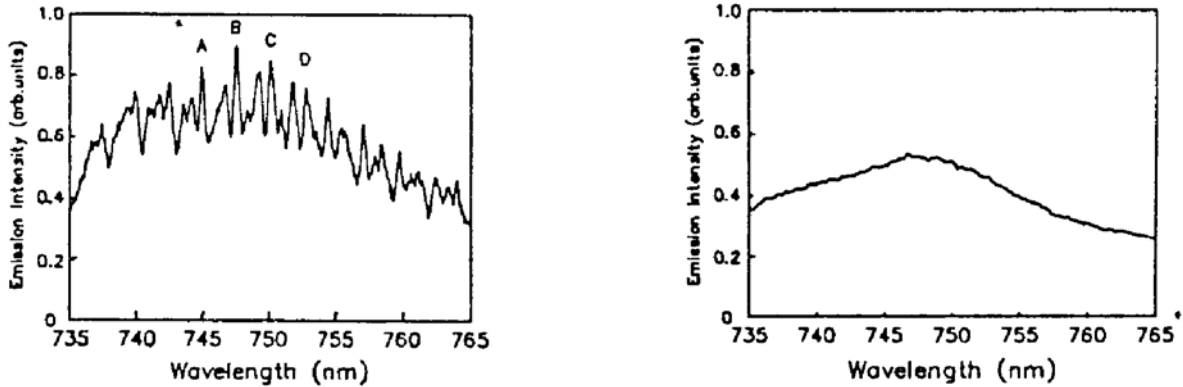


Fig. 2 (a) Emission spectrum observed from a 45 μm diameter Nd-glass microsphere. The spectral peaks superimposed on the broadand Nd-glass emission are due to cavity QED enhancement and their positions correspond to MDR modes. The four peaks under A B C and D have the same mode order number

(b) Emission spectrum of an irregular Nd-glass power which is in the size of several ten micrometers. No QED structures exist

### 3 荧光谱的分析

微球构成了一个光学谐振腔. 当荧光波长 λ 与微球腔共振时, 荧光信号由两部分构成. 一部分来源于模体积内的激发钕离子, 强度为  $I_m \simeq V_m N_m A_c \rho(\lambda) \zeta$ , 其中  $N_m$  为模体积内激发钕离子的平均密度,  $A_c$  为考虑量子电动力学增强后的自发辐射系数,  $\rho(\lambda)$  为钕玻璃非均匀加宽的归一化线型函数, 即  $\int_0^\infty \rho(\lambda) d\lambda = 1$ ,  $\zeta$  为该模式的向外耦合系数, 它与腔内吸收损耗有关. 另外一部分荧光信号产生于模体积外的激发钕离子, 这些钕离子的自发辐射受腔的影响很小 (略有抑制)<sup>[8]</sup>, 基本上与大块介质中的钕离子类似, 其强度约为  $I_b \simeq (V - V_m) N_s A_0 \rho(\lambda)$ , 式中  $N_s$  为模体积外的激发钕离子平均密度,  $A_0$  为钕玻璃的自发辐射系数. 若用  $m$  代表微球介质的折射率, 由于模体积远小于微球的体积  $V$ <sup>[9]</sup>, 即  $V_m/V \simeq 1/m^2 D^3 \ll 1$ , 则有  $I_b \simeq V N_s A_0 \rho(\lambda)$ . 而当 λ 偏离共振模时, 自发辐射的情况与共振时模体积外的钕离子类似, 故其强度  $I_s \simeq I_b$ . 正如

图 2 中实验光谱曲线所显示的那样,  $I_a$  和  $I_b$  两部分荧光构成了类似于大块铽玻璃荧光谱的背景谱, 而  $I_m$  则产生了背景上面的尖峰结构. 结构与腔模相对应. 假定模体积内外的激发铽离子平均密度相等, 那么结构与背景的背景强度比例为

$$r = I_m/I_b = (V_m/V) \eta \zeta \quad (1)$$

式中  $\eta = A_c/A_0$  为模体积内平均的量子电动力学增强倍数. 腔模的总  $Q$  由关系式

$$1/Q = 1/Q_{ext} + 1/Q_{ab} \quad (2)$$

确定, 式中  $Q_{ext}$  为腔模光场向外泄漏造成的, 而  $Q_{ab}$  则是由内部吸收决定<sup>[9]</sup>, 即  $Q_{ab} = 2\pi m/\alpha\lambda$ . 实验中用的铽玻璃在 750 nm 附近的吸收系数  $\alpha \approx 2.4 \text{ cm}^{-1}$ , 对应的  $Q_{ab} \approx 5 \times 10^4$ . 图 2 中各模式的线宽  $\delta\lambda \geq 0.5 \text{ nm}$ , 那么  $Q = \lambda/\delta\lambda \leq 1500$ , 可见  $Q$  远小于  $Q_{ab}$ . 所以模式的向外耦合系数  $\zeta = Q/Q_{ext} = 1 - Q/Q_{ab} \approx 1$ . 于是由前面给出的  $\eta = 2DQ\lambda^3/4\pi^2 V_m$  以及  $V_m/V \approx 1/m^2 D^{3/2}$

$$r = \zeta \eta V_m/V = 9DQ/2x^3 \quad (3)$$

腔模简并度  $D = 2n + 1$ <sup>[9]</sup>. 要严格定出模数  $n$  需要很精确地测定微球的尺寸、折射率以及模式的波长位置. 但是估算  $n$  的近似值则比较容易. 尽管模数  $n$  分布于  $x \sim mx$  的大范围内, 但是  $n - x$  越大, 模式的  $Q$  就越大; 而实验中出现的模式的  $Q$  只在 1500 左右, 故可以推想这些模式的模数  $n \approx x$ . 为进一步证明这种近似的合理性, 作者计算了折射率  $n = 1.52$  时微腔在  $195 < x < 215$  以及  $200 < n < 225$  限定的范围内的模式  $Q$ . 以上  $x$ 、 $n$  范围的选择很接近实验选用的微球. 计算采用常规的方法, 也就是对米氏散射系数  $a_n$ 、 $b_n$  的分母虚部求根<sup>[10]</sup>. 结果表明,  $500 < Q < 10^4$  范围内的模式只有在  $n \leq 222$  时才存在, 它们的位置  $x$  在 5% 的精度内与  $n$  相等. 在  $n = x$  的近似下 ( $D \approx 2x$ ), (3) 式简化为  $r \approx 9Q/x^2$ , 同时有

$$\eta \approx 9 \sqrt{2} m^2 Q/x^2 \quad (4)$$

对于图 2 中标出的 A、B、C、D 四个模式, 其品质因数  $Q \approx 1500$ , 尺寸参数  $x \approx 200$ ; 若根据 (3) 式估算则有  $r \approx 1/3$ , 与图中显示的实验结果 ( $r = 1/3 \sim 1/2$ ) 很接近. 此时由 (4) 式可算出腔内量子电动力学增强为  $\eta \approx 16$ . 理论上, 同一个序数  $\tau$  的一系列模式有相近的  $Q$ , 而且任意两个相邻模式间的距离保持不变<sup>[10]</sup>, 即  $\Delta x = \tan^{-1}(m^2 - 1)^{1/2}/(m^2 - 1)^{1/2} \approx 0.745$ . 图 2 中的 A、B、C 和 D 四个模式符合这些特征, 它们的模序数相同, 模间距为  $\Delta\lambda = 2.75 \text{ nm}$ , 则微球的直径  $d = \lambda^2 \Delta x / \pi \Delta\lambda \approx 48 \mu\text{m}$ , 与用显微镜测得的读数 (45 nm) 在误差范围内一致. 另外,  $r$  与  $Q$  成正比但反比于  $x^2$ ; 图 3 中给出了一个尺寸较大 (直径 61  $\mu\text{m}$ ) 的微球荧光谱, 谱中腔模的  $Q$  也较低, 量子电动力学结构的相对强度  $r$  明显下降.

## 4 讨 论

前面的分析过程中曾假定模体积内外的激发铽离子平均密度相等, 而图 2、图 3 中的光谱都是在直接激发微发微球边缘的情况下得到的. 这种激发方式似乎对模体积的铽离子有

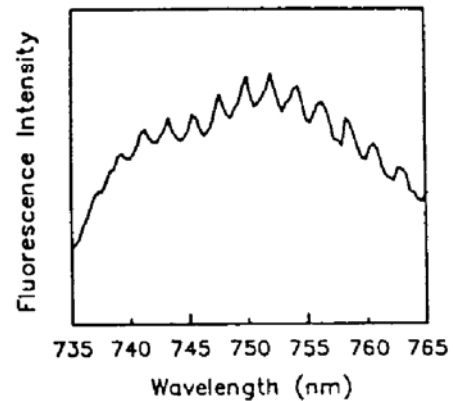


Fig. 3 Emission spectrum observed from a larger Nd-glass microsphere (61  $\mu\text{m}$  in diameter). The ratio of MDR peak heights to that of background is lower than that in Fig. 2(a)

利;但如果考虑到泵浦光进入腔内经衍射和多次反射将涉及腔内绝大部分空间,那么前面的假定还是合理的.假如泵浦光与微腔共振(输入共振),泵浦能量将主要集中在微腔表面附近,而腔模占据的空间也在此区域,所以量子电动力学结构强度将会超过前面的估算.实验中的微球没有出现输入共振.

微球光谱中看不到  $Q > 10^4$  的模式.这并不说明腔内不存在这类模式的荧光,因为微腔的内部吸收对高  $Q$  模的损耗很大,降低了向外耦合效率.所以实验中观察到的模式的  $Q$  一般地  $10^3$  左右.

**总 结** 腔内量子电动力学效应造成了钕玻璃微球荧光谱的共振结构.  $Q$  在  $10^3$  左右的模式容易在光谱中出现.尽管光谱中量子电动力学结构的强度较弱,但自发辐射的增强达 16 倍.

作者衷心感谢朱从善研究员和马仲堂同志为实验提供了钕玻璃微球.

### 参 考 文 献

- [1] H. Chew, Radiation and life times of atoms inside dielectric particles. *Phys. Rev. (A)*, 1988, **38**: 3410~3416
- [2] E. M. Purcell, Spontaneous emission probabilities at radio frequencies. *Phys. Rev.*, 1946, **69**: 681
- [3] P. Goy, J. M. Raimond, M. Gross *et al.*, Observation of cavity-enhanced single atom spontaneous emission. *Phys. Rev. Lett.*, 1983, **50**: 1903~1906
- [4] P. R. Conwell, P. W. Barber, C. K. Rushforth, Resonant spectra of dielectric spheres. *J. Opt. Soc. Am. (A)*, 1984, **1**: 62~67
- [5] Petr Chylek, J. D. Pendleton, R. G. Pinnick, Internal and near surface scattered field of a spherical particle at resonant conditions. *Appl. Opt.*, 1985, **24**: 3940~3942
- [6] R. E. Benner, P. W. Barber, J. F. Owen *et al.*, Observation of structure resonances in fluorescence spectra from microspheres. *Phys. Rev. Lett.*, 1980, **44**: 475~478
- [7] Y. Z. Wang, Y. Q. Li, B. L. Lu, Observations of cavity QED effects in a Nd-glass micro-spherical cavity. *Ten th International Conference on Laser Spectroscopy xx*, Paris, France, June, (1991), invited paper, P205-210. Edited by M. Ducloy, E. Giacobino and G. Camy, Published by World Scientific Publishing Co. Pte. Ltd. Farrer Road, Singapore
- [8] H-B. Lin, J. D. Eversole, A. J. Cammpillo *et al.*, Cavity-modified spontoneuos emission rates in liquid microdroplets. *Phys. Rev. (A)*, 1992, **A45**: 6756~6760
- [9] A. J. Cammpillo, J. D. Eversole, H-B. Lin, Cavity quantum electrodynamic enhancement of stimulated emission in microdroplets. 1991, *Phys. Rev. Lett.*, **67**: 437~440
- [10] Steven C. Hill, C. K. Rushforth, R. E. Benner *et al.*, Sizing dielectric spheres and cylinders by aligning measured and computed resonance locations; algorithm multiple orders. *Appl. Opt.*, 1985, **24**: 2380~2390

### Study of Nd-Glass Microsphere Spectra Modified by Cavity QED Effect

Lu Baolong      Wang Yuzhu      Li Yongqing      Liu Yashu

(Joint Laboratory for Quantum Optics, Shanghai Institute of Optics, & Fine Mechanics,  
Academia Sinica, Shanghai 201800)

(Received 16 October 1992; revised 3 February 1993)

**Abstract** In this paper, we discuss the influence of cavity quantum electro-dynamic (QED) effect on the fluorescence spectra of Nd-glass microspheres. The relative magnitude of the spikes and the background in spectra is analysed. The cavity QED enhancement of spontaneous emission rate is estimated to reach 16 times.

**Key words** cavity QED effect, MDR mode, size parameter.