

## Взаимодействие таммовского плазмона и экситона в органическом материале в режиме сильной связи

© К.М. Морозов<sup>1</sup>, А.В. Белоновский<sup>1</sup>, К.А. Иванов<sup>2</sup>, Е.И. Гиршова<sup>1,3</sup>, М.А. Калитеевский<sup>1,2,3,¶</sup>

<sup>1</sup> Санкт-Петербургский Академический университет,  
194021 Санкт-Петербург, Россия

<sup>2</sup> Университет ИТМО,  
197101 Санкт-Петербург, Россия

<sup>3</sup> Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук,  
194021 Санкт-Петербург, Россия

¶ E-mail: Kalit@mail.ioffe.ru

Поступила в Редакцию 24 апреля 2019 г.

В окончательной редакции 29 апреля 2019 г.

Принята к публикации 29 апреля 2019 г.

Проведено теоретическое исследование взаимодействия таммовского плазмона с экситоном в органическом материале в режиме сильной связи. Структура представляла собой брэгговский отражатель из 5 пар слоев оксида кремния и оксида тантала, органического светоизлучающего слоя материала 4'-Bis(*N*-carbazolyl)-1,1'-biphenyl и слоя серебра. Показано, что в такой структуре имеет место расщепление поляритонных мод (расщепление Раби) величиной  $> 400$  мэВ, что может сопровождаться увеличением ширины полосы люминесценции до 700 мэВ.

**Ключевые слова:** таммовский плазмон, органический светодиод, экситон, режим сильной связи.

DOI: 10.21883/FTP.2019.10.48288.34

### 1. Введение

Перспективные источники [1–4] и детекторы света [5,6] на основе таммовских плазмонов (состояний электромагнитного поля, локализованных на границе брэгговского отражателя и металла [7]) интенсивно исследуются в последнее время. В некоторых органических светоизлучающих материалах экситоны обладают очень высокой силой осциллятора, что приводит к взаимодействию экситона в органическом материале и собственной оптической моды микрорезонатора в режиме сильной связи [8], причем величина расщепления поляритонных мод (расщепление Раби) может достигать нескольких сотен мэВ. В микрорезонаторах с органическими материалами люминесценция в режиме сильной связи наблюдается только из нижней поляритонной моды. В структурах с таммовскими плазмонами и полупроводниковыми квантовыми ямами люминесценция экспериментально наблюдалась и для верхней поляритонной ветки [9].

Недавно было продемонстрировано увеличение скорости спонтанной эмиссии в структурах с таммовским плазмоном с активной областью из квантовых точек [10], таким образом, структуры с таммовскими плазмонами могут использоваться для высокоэффективных резонансных светодиодов.

Данная работа посвящена теоретическому исследованию взаимодействия таммовского плазмона и экситона в органическом материале с целью определения дизайна структуры, обеспечивающей люминесценцию как из нижней, так и из верхней поляритонной моды.

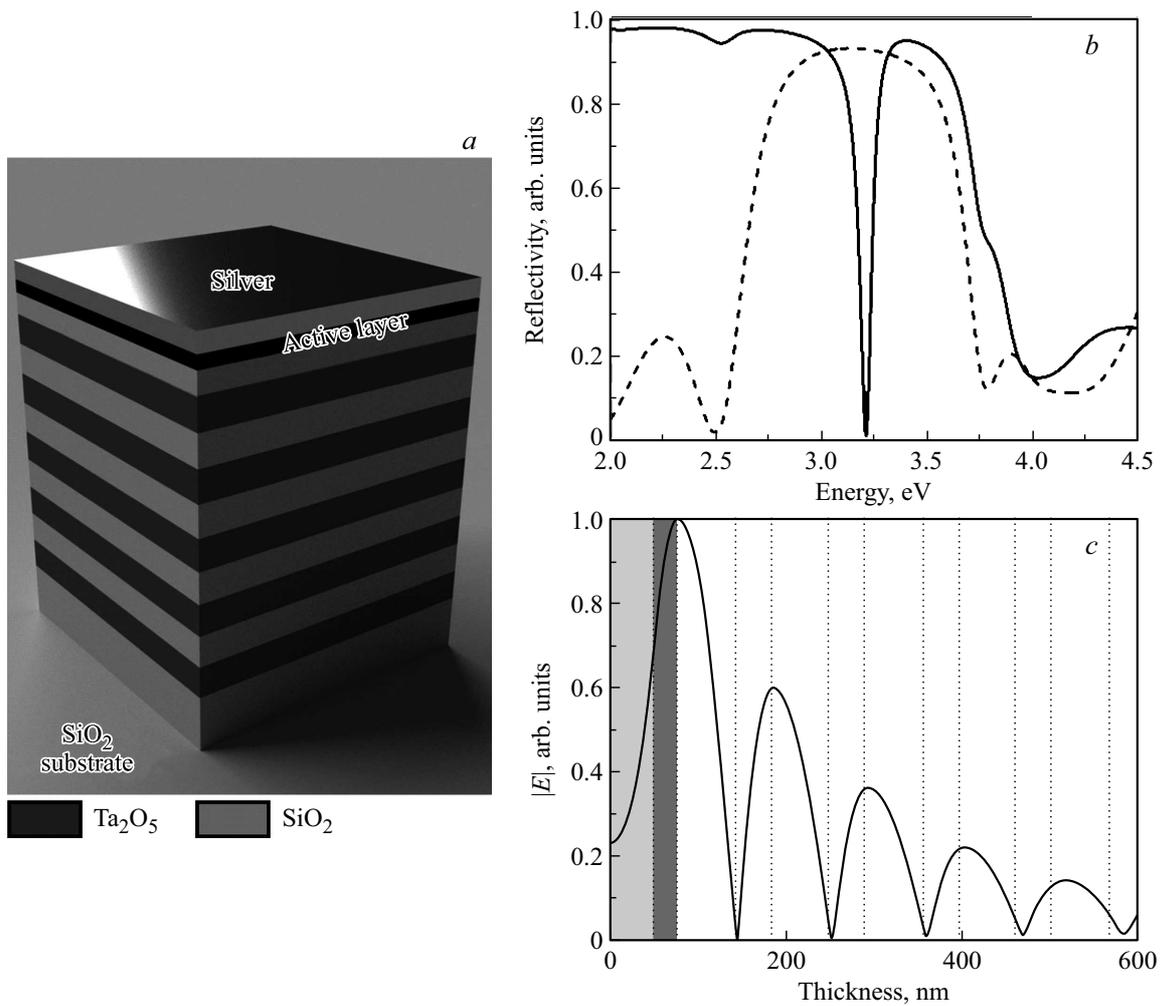
### 2. Результаты и обсуждение

Была рассмотрена структура с таммовским плазмоном, состоящая из распределенного брэгговского отражателя (5 пар  $\text{Ta}_2\text{O}_5/\text{SiO}_2$  слоев на подложке  $\text{SiO}_2$  с толщинами 39 и 66 нм соответственно), активного органического слоя материала СВР (4,4'-Bis(*N*-carbazolyl)-1,1'-biphenyl) толщиной 26 нм и слоя серебра толщиной 50 нм. Схема структуры показана на рис. 1, *a*. Рассчитанный спектр отражения при нормальном падении света от  $\text{Ta}_2\text{O}_5/\text{SiO}_2$  брэгговского отражателя представлен на рис. 1, *b* пунктирной линией. Сплошной линией на рис. 1, *b* показан спектр отражения при нормальном падении от структуры с таммовским плазмоном, показанной на рис. 1, *a*. Провал в спектре отражения на частоте  $\omega = 3.21$  эВ соответствует таммовскому плазмону, профиль электрического поля таммовского плазмона показан на рис. 1, *c*. Электрическое поле локализовано вблизи границы слоя серебра (светло-серая область) и СВР (темно-серая область), в котором и находится максимум электрического поля.

На рис. 2 показана спектральная зависимость действительной и мнимой частей показателя преломления СВР в экситонной области спектра, описываемая выражением

$$\epsilon_{\text{СВР}}(\omega) = \epsilon_b + \frac{\omega_{\text{ЛГ}}}{\omega_{\text{exc}} - \omega - i\gamma_{\text{exc}}}, \quad (1)$$

где  $\epsilon_b$  — фоновая диэлектрическая проницаемость,  $\omega_{\text{ЛГ}}$  — продольно-поперечное расщепление,  $\omega_{\text{exc}}$  — резонансная частота и  $\gamma_{\text{exc}}$  — нерадикационное затухание экситона (150 мэВ), значения которых равны  $\epsilon_b = 3.2$ ,  $\omega_{\text{ЛГ}} = 130$  мэВ [11].



**Рис. 1.** *a* — схема структуры с таммовским плазмоном с органической активной областью. *b* — спектры отражения структуры с таммовским плазмоном (сплошная линия) и распределенного брэгговского отражателя (пунктирная линия) при нормальном падении. *c* — распределение модуля электрического поля в случае ТЕ-поляризации. Точечные линии демонстрируют положения интерфейсов между слоями. Серая и темно-серая области соответствуют слою серебра и активной области СВР соответственно.

Можно видеть, что экситон в СВР имеет частоту  $\omega_{exc} = 3.52$  эВ, при этом линия излучения сдвинута относительно экситона в сторону низких энергий на  $\sim 300$  мЭВ.

Используя модель связанных осцилляторов, можно получить частоты поляритонных мод, которые задаются выражением

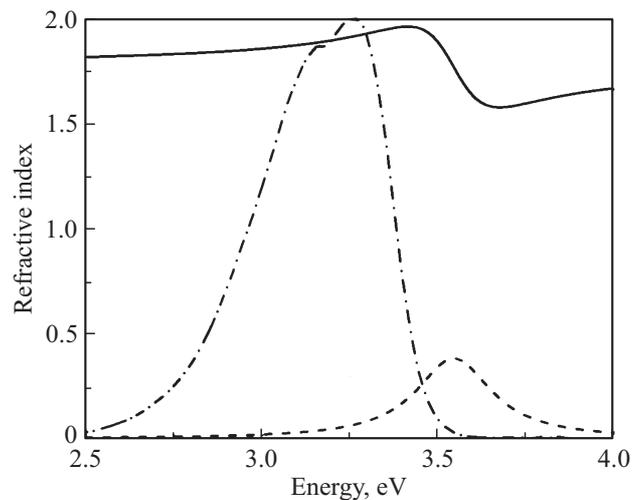
$$\omega_{UP,LP} = \frac{\omega_{exc} + \omega_{TP}}{2} - \frac{i(\gamma_{exc} + \gamma_{TP})}{2} \pm \frac{\Omega_{Rabi}}{2}, \quad (2)$$

где

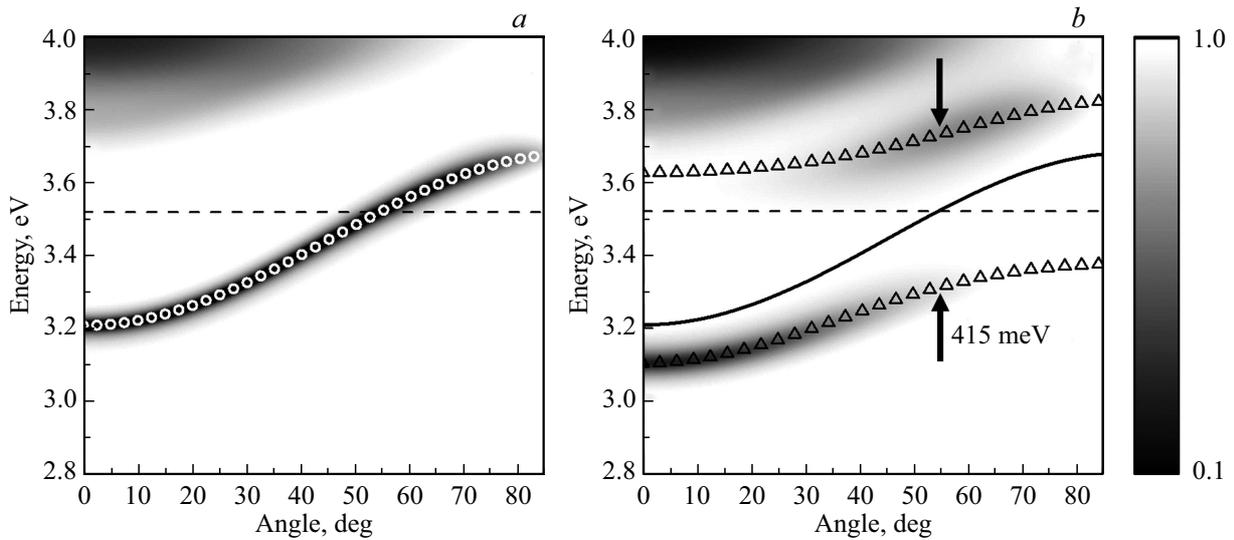
$$\Omega_{Rabi} = 2\sqrt{V^2 + \frac{1}{4}(\omega_{exc} - \omega_{TP} - i(\gamma_{exc} - \gamma_{TP}))^2}$$

— расщепление Раби,  $V = \sqrt{\omega_{exc}\omega_{LP}}$  — константа связи таммовского плазмона с экситоном,  $\gamma_{TP}$  — затухание моды таммовского плазмона [12].

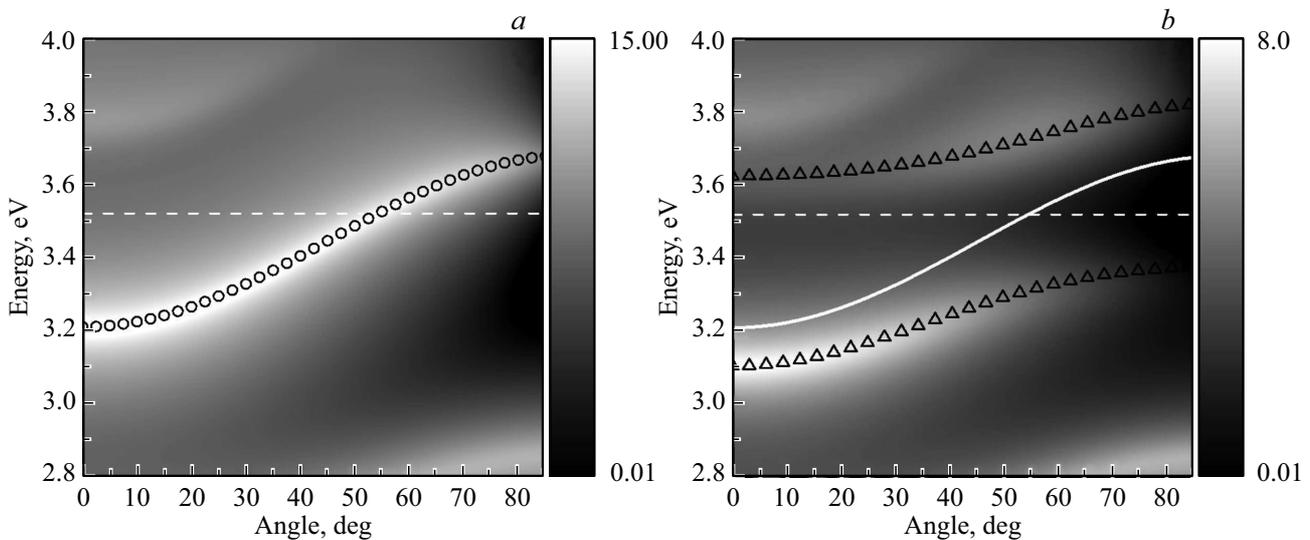
Рис. 3 иллюстрирует возникновение сильной связи при взаимодействии экситона с таммовским плаз-



**Рис. 2.** Действительная (сплошная линия) и мнимая (пунктирная линия) части показателя преломления органического материала СВР (4,4'-Bis(*N*-carbazolyl)-1,1'-biphenyl). Штрихпунктирная линия показывает спектр излучения материала.



**Рис. 3.** *a* — рассчитанная зависимость коэффициента отражения от энергии и угла для структуры с таммовским плазмоном при отсутствии экситонного вклада в диэлектрической проницаемости органического материала в случае ТЕ-поляризации. Кружки показывают дисперсию таммовского плазмона. *b* — рассчитанная зависимость коэффициента отражения от энергии и угла для структуры с таммовским плазмоном в режиме сильной связи. Треугольники показывают дисперсии верхней и нижней поляритонных ветвей. Сплошная линия — дисперсия таммовского плазмона. Пунктирная линия показывает энергию экситонного резонанса.



**Рис. 4.** *a* — рассчитанная зависимость модового коэффициента Парселла от энергии и угла для структуры с таммовским плазмоном при отсутствии экситонного вклада в диэлектрической проницаемости органического материала в случае ТЕ-поляризации. Кружки показывают дисперсию таммовского плазмона. *b* — рассчитанная зависимость модового коэффициента Парселла от энергии и угла для структуры с таммовским плазмоном в режиме сильной связи. Треугольники показывают дисперсии верхней и нижней поляритонных ветвей. Сплошная линия — дисперсия таммовского плазмона. Пунктирная линия показывает энергию экситонного резонанса.

моном. На рис. 3, *a* показана зависимость коэффициента отражения от рассматриваемой структуры при отсутствии в спектральной зависимости диэлектрической проницаемости СВР (при  $\omega_{LT} = 0$ ). Можно видеть провал, соответствующий таммовскому плазмону. При наличии экситонной особенности в СВР, в спектрах отражения можно видеть два провала (рис. 3, *b*),

соответствующих поляритонным модам, и дисперсионные зависимости верхней и нижней поляритонных мод имеют характер антипересечения с расщеплением  $> 400$  мэВ.

Вследствие эффекта Парселла вероятность спонтанной эмиссии для излучателя в микрорезонаторе может быть увеличена. В структурах с таммовским плазмо-

ном наблюдалось увеличение вероятности спонтанной эмиссии для частот и направлений излучения, соответствующих таммовскому плазмону в режиме слабой связи [10]. Значительное увеличение вероятности спонтанной эмиссии в таких структурах объясняется высокой степенью локализации электрического поля моды в активном слое.

На рис. 4 показаны рассчитанные зависимости модального коэффициента Парселла [10,13] от частоты и направления эмиссии при отсутствии экситонной особенности (рис. 4, *a*) и при ее наличии (рис. 4, *b*). Можно видеть, что при отсутствии экситонной особенности в области частот и направлений, соответствующих таммовскому плазмону, вероятность спонтанной эмиссии увеличена. При взаимодействии таммовского плазмона с экситоном в СВР при малых углах эмиссии имеет место усиление спонтанной эмиссии для нижней поляритонной ветки, а при углах эмиссии  $> 50^\circ$  — для верхней поляритонной ветки, такое поведение обусловлено различиями в пространственных профилях электрического поля для верхней и нижней поляритонных мод.

Процессы рассеяния неравновесных поляритонов в органических светоизлучающих веществах могут характеризоваться малой скоростью, что позволяет наблюдать люминесценцию из высокоэнергетических областей поляритонных мод [14].

Увеличение вероятности спонтанной эмиссии для верхней и нижней поляритонных мод делает возможным люминесценцию на частотах, соответствующих как нижней, так и верхней поляритонным модам, что может существенно увеличить ширину полосы люминесценции структуры (до 700 мэВ) по сравнению с полосой люминесценции материала (450 мэВ).

### 3. Заключение

Был проведен теоретический анализ возможности использования эффекта сильной связи между экситоном в органическом материале и таммовским плазмоном для создания светоизлучающих структур с широкой полосой излучения. Исследуемая структура представляла собой брэгговский отражатель из слоев оксида кремния и оксида тантала на подложке оксида кремния, на который были нанесены слои органического 4,4'-Bis(*N*-carbazolyl)-1,1'-biphenyl (СВР) и серебра. Были проведены расчеты коэффициента отражения и вероятности спонтанной эмиссии от частоты и направления эмиссии. Продемонстрировано, что при взаимодействии экситона в СВР и таммовского плазмона в режиме сильной связи ширина полосы люминесценции структуры существенно увеличивается по сравнению с шириной полосы люминесценции материала.

### Благодарности

Авторы выражают благодарность Российскому научному фонду (проект № 16-12-10503).

### Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

### Список литературы

- [1] R. Brückner, A.A. Zakhidov, R. Scholz, M. Sudzius, S.I. Hintschich, H. Fröb, V.G. Lyssenko, K. Leo. *Nature Photonics*, **6** (5), 322 (2012).
- [2] C. Symonds, G. Lheureux, J.P. Hugonin, J.J. Greffet, J. Laverdant, G. Bruccoli, A. Lemaître, P. Senellart, J. Bellessa. *Nano Lett.*, **13** (7), 3179 (2013).
- [3] A.R. Gubaydullin, C. Symonds, J.-M. Benoit, L. Ferrier, T. Benyattou, C. Jamois, A. Lemaître, P. Senellart, M.A. Kaliteevski, J. Bellessa. *Appl. Phys. Lett.*, **111** (26), 261103 (2017).
- [4] R. Bikbaev, S. Vetrov, I. Timofeev. *Photonics*, **5** (3), 22 (2018).
- [5] S.-G. Huang, K.-P. Chen, S.-C. Jeng. *Opt. Mater. Express*, **7** (4), 1267 (2017).
- [6] S.V. Boriskina, Y. Tsurimaki. *J. Phys. Condens. Matter*, **30** (22), 224003 (2018).
- [7] M. Kaliteevski, I. Iorsh, S. Brand, R.A. Abram, J.M. Chamberlain, A.V. Kavokin, I.A. Shelykh. *Phys. Rev. B*, **76** (16), 165415 (2007).
- [8] D. Ballarini, M. De Giorgi, S. Gambino, G. Lerario, M. Mazzeo, A. Genco, G. Accorsi, C. Giansante, S. Colella, S. D'Agostino, P. Cazzato, D. Sanvitto, G. Gigli. *Adv. Optical Mater.*, **2**, 1076 (2014).
- [9] C. Symonds, A. Lemaître, E. Homeyer, J.C. Plenet, J. Bellessa. *Appl. Phys. Lett.*, **95** (15), 151114 (2009).
- [10] A.R. Gubaydullin, C. Symonds, J. Bellessa, K.A. Ivanov, E.D. Kolykhalova, M.E. Sasin, A. Lemaître, P. Senellart, G. Pozina, M.A. Kaliteevski. *Sci. Rep.*, **7**, 9014 (2017).
- [11] B. Deveaud. *The Physics of Semiconductor Microcavities: From Fundamentals to Nanoscale Devices* (Wiley-VCH Verlag GmbH & Co., 2007).
- [12] E.L. Ivchenko, M.A. Kaliteevski, A.V. Kavokin, A.I. Nesvizhskii. *J. Opt. Soc. Am. B*, **13** (5), 1061 (1996).
- [13] K.M. Morozov, A.R. Gubaydullin, K.A. Ivanov, G. Pozina, M.A. Kaliteevski. *J. Phys. Condens. Matter*, **30**, 435304 (2018).
- [14] D.M. Coles, P. Michetti, C. Clark, W.C. Tsoi, A.M. Adawi, J.-S. Kim, D.G. Lidzey. *Adv. Funct. Mater.*, **21**, 3691 (2011).

Редактор А.Н. Смирнов

## Interaction of Tamm plasmon and exciton in organic material in the strong coupling regime

*K.M. Morozov<sup>1</sup>, A.V. Belonovskii<sup>1</sup>, K.A. Ivanov<sup>2</sup>,  
E.I. Girshova<sup>1</sup>, M.A. Kaliteevskij<sup>1,2,3</sup>*

<sup>1</sup> St. Petersburg Academic University,  
194021 St. Petersburg, Russia

<sup>2</sup> ITMO University,  
197101 St. Petersburg, Russia

<sup>3</sup> Ioffe Institute,  
194021 St. Petersburg, Russia

**Abstract** Theoretical analysis of the interaction between Tamm plasmon and exciton in organic material has been carried out. The structure is 5 pair silicon oxide and tantalum oxide Bragg reflector, 4'-Bis(*N*-carbazolyl)-1,1'-biphenyl (CBP) organic material layer and a silver layer. In the considered structure splitting of polaritonic modes (Rabi splitting) of 400 meV order was demonstrated. Splitting may be accompanied with an increase in luminescence bandwidth up to 700 meV.