

双微球远程耦合实现激子及其复合体分离*

张峻源 张馨雨 张璟如 丰夏莲 谷付星 于佳鑫[†]

(上海理工大学, 光电信息与计算机工程学院, 上海 200093)

摘要

二维过渡金属硫族化合物单层材料中的激子及其复合体是研究低维多体物理的重要载体, 但其光致发光谱成分复杂且受缺陷态背景干扰, 难以分离鉴别. 本文提出一种“边缘激发-远程收集”的双介电微球远程耦合结构, 实现激子光谱筛选和鉴别. 一方面, 微球与金属界面模共同提供光学耦合选择性, 边缘激发可将可耦合的激子辐射近场分量定向转化为远程传播信号; 另一方面, 不同激子态在样品内具有不同的有效传播尺度, 远程收集保留可传播的激子能量贡献. 这种双重筛选机制有效抑制了宽谱背景, 并提高了特征谱线的可辨识度. 基于此, 我们在多组微球共振条件与多器件上重复测量, 观察到两个特征峰的能量锁定现象, 并以明激子为内标获得二者稳定的能量差统计(67.1 ± 5.5 meV 与 87.6 ± 5.8 meV); 结合路径互换、局部破损扰动与功率幂律分析, 建立无需外场的判据链, 区分两组成分在远程读出链路中的参与差异并给出了初步激子成分判断. 该方法为非理想样品条件下暗态相关发光的可重复读出与候选归属提供了实用谱学工具.

关键词: 二维半导体, 激子复合体, 远程耦合, 光谱检测

PACS: 68.65.-k, 71.35.Ji, 71.35.-y, 78.55.-m

* 国家自然科学基金(批准号: 12074259, 62122054)资助的课题。

[†] 通信作者. E-mail: yujiaxin@usst.edu.cn

第一作者. E-mail: zhangjunyuan@st.usst.edu.cn

1 引言

二维过渡金属硫族化合物(transition metal dichalcogenides, 简记为 TMDs)单层材料因其强库仑束缚和谷自由度而成为研究低维激子物理的重要平台^[1]. 单层 TMD 中的明激子、暗激子及其复合体(如三元激子、带电激子、束缚态与声子辅助发光等)呈现出丰富而可调的能级结构与动力学过程^[2-4], 为理解自旋-谷耦合、载流子-激子相互作用以及多体效应提供了理想体系^[5, 6]. 近年来, 二维体系中强相互作用的相关研究认为, 激子可能参与形成更复杂的关联态与有序态, 进一步推动了直接利用精细光谱对激子及其复合体深入研究的需求^[7, 8].

然而, 光致发光(photoluminescence, 简记为 PL)实验中对激子复合体的可靠

鉴定仍面临显著挑战. 其一, 样品中的点缺陷、边界及局域应变易产生强烈的束缚态和缺陷发光宽谱背景^[9], 导致谱线拥挤并掩盖本征激子复合体信号; 其二, 不同复合体峰位间隔往往仅为数十 meV, 且随局域电荷环境与微观无序变化而漂移, 使得基于单一器件、单一激发和收集的谱学归属容易产生歧义. 为提高激子态或特定复合体的可见度, 已有工作采用施加磁场^[5]、电学栅控^[3]、应变与纳腔增强和近场探测等策略^[10], 但这些方法往往对材料质量和测量结构条件要求较高, 难以获得同时具备高信噪比与可重复性的分离结果.

本文提出一种基于双介电微球的 PL 远程读出方案: 两颗相距十余微米的微球分别作为激发端和收集端, 实现“边缘激发-远程收集”的测量构型. 该构型通过传播尺度筛选和界面模近场耦合, 优先保留可远程传播的激子通道并将其转化为可收集信号, 从而抑制宽谱背景、凸显特征谱线. 为排除缺陷发光、微球本征模态等混杂信号的干扰, 我们在不同共振条件及多组器件上重复测量, 发现两特征峰相对明激子的能量差稳定锁定, 确立了可重复的谱学基准. 在此基础上, 通过路径互换、路径结构缺陷对比, 进一步揭示两种成分在界面耦合与远程读出链路中的参与程度存在显著差异, 对两种谱线成分的可能物理起源给出初步判断.

2 样品与系统

本实验采用化学气相沉积法制备单层 WSe₂ 样品^[2, 11], 然后将 WSe₂ 剥离至聚二甲基硅氧烷(PDMS)薄膜上, 随后利用光纤探针将金纳米片转移至 WSe₂ 表面, 最终将异质结构转移至二氧化硅基底完成器件制备. 双微球耦合结构由两颗直径约 6 μm 的熔融石英微球构成, 间距约 10–20 μm^[12, 13]. 样品置于低温恒温器中, 基底温度控制在 7.1 K, 波动优于 ±0.1 K^[2]. 双微球系统的激发光源使用波长为 633 nm 的连续波激光(MDL-E-633-20 mW), 通过微球(microsphere, 简记为 MS)中心(中心激发)或偏离微球中心 2.5 μm(边缘激发, 图 1a 中 MS1); 而收集端利用微球回音壁模式(whispering gallery mode, 简记为 WGM) 辐射至远场(图 1(a)中 MS2)^[12, 13], 通过 50 倍显微物镜(NA = 0.55)耦合至光谱收集系统(Horiba iHR550).

3 实验现象与结果

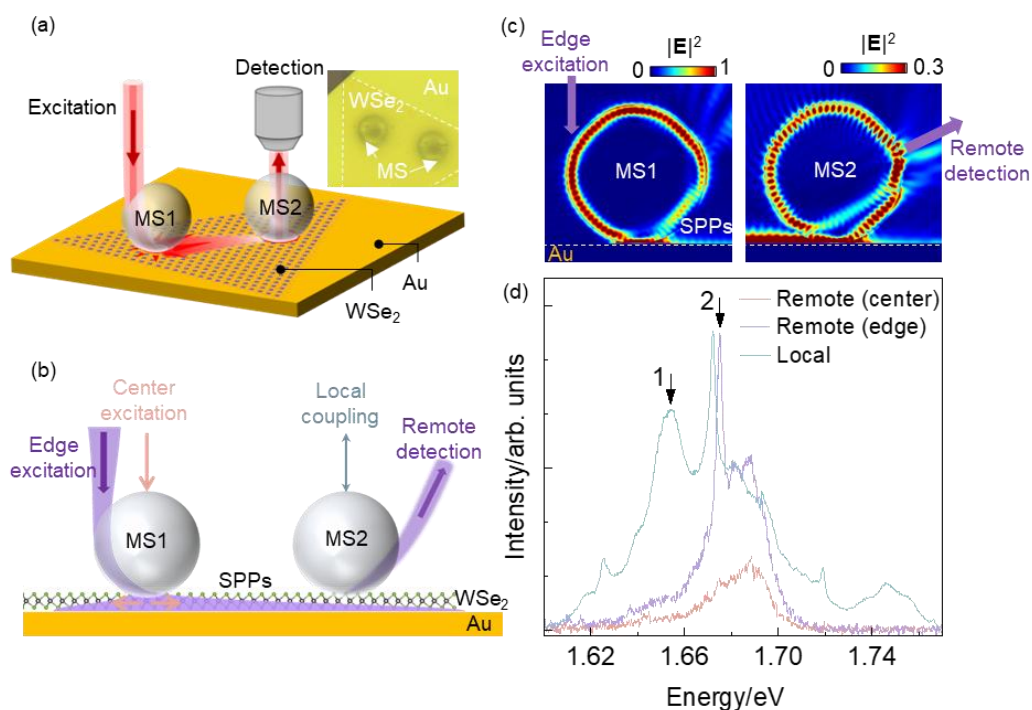


图 1 (a) 双微球远程耦合系统示意图(MS1: 激发端, MS2: 收集端); 插图: 系统结构光学显微镜照片, 白色虚线表示金与 WSe₂ 交界; (b) 激发-收集耦合机制示意图: 远程激发边缘入射(紫)与中心入射(粉), 通过激发表面等离激元实现远程耦合, 同位激发(绿, MS2 同时作为激发端与收集端); (c) 边缘激发的微球回音壁模式电场分布模拟(|E|²); (d) PL 光谱对比: 远程激发中心入射(粉)与边缘入射(紫)、同位激发(绿), 边缘入射的发光强度较中心入射提升约 2.35 倍。

Fig. 1 (a) Schematic of the dual-microsphere remote-coupling system (MS1: excitation microsphere, MS2: detection microsphere). Insert: optical micrograph of the system structure, where the white dashed line indicates the Au-WSe₂ boundary; (b) Schematic of the excitation-collection coupling mechanism: remote excitation with edge incidence (purple) and center incidence (pink), where remote coupling is achieved via surface plasmon polaritons excitation, and local coupling (green, with MS2 serving as both excitation and detection microsphere); (c) Simulated electric field intensity distribution ($|E|^2$) of the whispering-gallery mode under edge excitation; (d) Comparison of PL spectra for remote excitation with center incidence (pink) and edge incidence (purple), and local coupling (green), showing that the emission intensity under edge incidence is enhanced by approximately 2.35-fold relative to center incidence.

3.1 远程读出与背景抑制

如图 1(d) 绿色曲线所示, 在 MS2 同位激发-同位收集下, 获得的 PL 光谱中包含有多种辐射通道叠加而成的成分峰, 以及微球所支持的一系列本征光学共振模态(1.719 eV、1.672 eV 和 1.625 eV)。此外, 光谱中还观察到多种起源于材料本身的辐射复合通道, 包括明激子发光峰(1.746 eV) 以及位于低能量侧的局域/束缚态与宽谱背景等成分, 其中以 1.654 eV 附近的发光峰为代表(图 1(d)中箭头 1)^[9, 14]。当相距 16.08 μm 的两微球分别作为激发端和收集端时(图 1(d)中紫色曲线),

而与激子相关的特征发光在低能量侧呈现出更高的相对对比度与更清晰的谱线可辨识度(如 1.675 eV 附近的峰, 图 1(d)中箭头 2).

这种长程选择性可理解为激子运输的传播尺度筛选和辐射的界面模近场耦合的共同结果^[13, 15, 16]. 一方面, 缺陷相关的局域态发光通常局限于激发区域附近, 其远离激发点后的可见度会随距离快速衰减^[9, 14, 17]; 相比之下, 自由或弱束缚激子的有效传播尺度更长, 因此在远程几何下更可能保留可被收集的辐射贡献^[15, 16, 18]. 另一方面, 作为界面模近场耦合与收集端的微球具有一定的模态选择性, 例如金表面支持的表面等离激元(surface plasmon polaritons, 简记为 SPPs)与微球形成的 SPP-WGM 杂化模式^[13, 19, 20], 更容易把与其耦合条件相匹配的具有面外偶极的辐射分量(如自旋或动量暗激子)转化为可收集信号, 而抑制具有面内偶极的辐射分量(如明激子、缺陷态等)^[1, 5, 13, 21]. 经两方面筛选, 实现了抑制宽谱、非共振的背景成分.

除收集端的传播尺度筛选外, 远程读出 PL 光谱的信噪比还与激发方式密切相关. 在固定距离的远程读出构型下, 当激发光从微球中心入射时, 收集光谱中可观察到微弱的 1.688 eV 与 1.675 eV 额外特征峰(图 1(d)中粉色曲线). 当激发光从微球边缘入射时, 发光强度相较中心激发提升约 2.35 倍, 且高信噪比的激子相关特征峰仅在边缘入射条件下稳定可见(图 1(d)中紫色曲线). 这种激发位置敏感性暗示微球耦合机制可能存在与入射位置相关的调制效应^[13, 19].

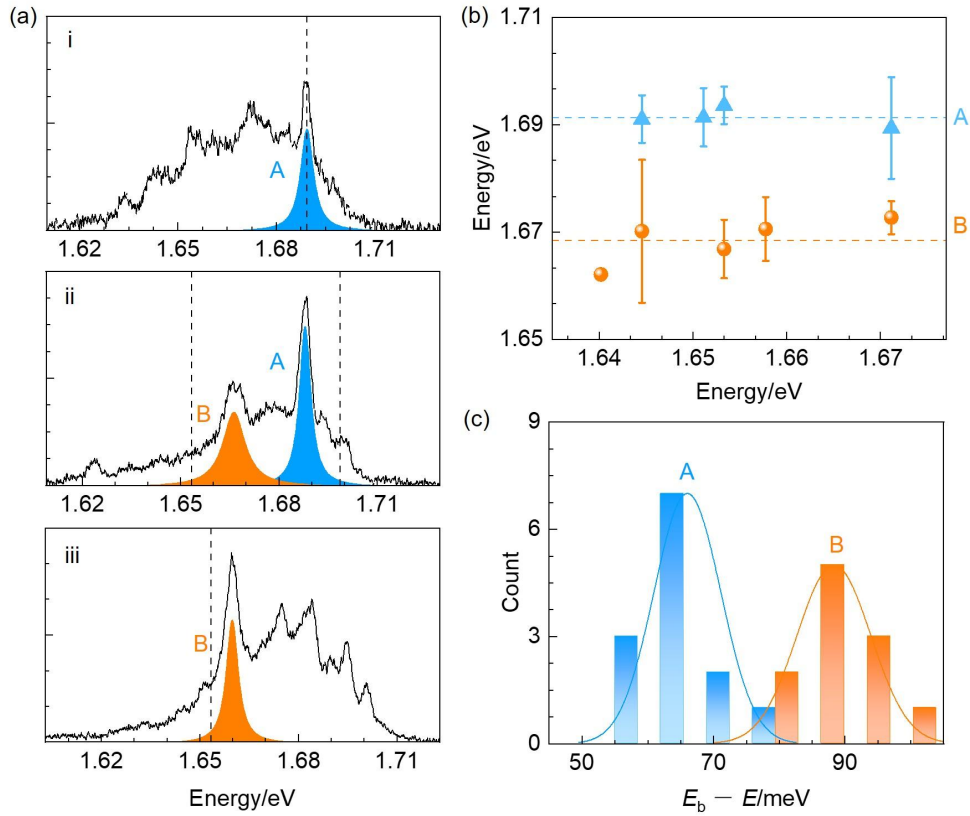


图 2 (a) 不同微球组合器件的远程读出 PL 光谱(为清晰展示能量稳定性, 沿能量轴根据明激子位置进行了平移对齐); 图中黑色虚线代表收集端球的本征模式位置, 尽管微球的共振位置变化, 但成分 A 与 B 的特征能量位置保持稳定; (b) 成分 A 与 B 的能量随收集端微球本征模式的变化, 表现出无关 WGM 的能量锁定行为; (c) 以明激子能量(E_b)位置为基准的能量差统计分布, 成分 A 与 B 的平均能量差分别为 67.1 ± 5.5 meV 与 87.6 ± 5.8 meV.

Fig. 2 (a) Remote-detection PL spectra under different microsphere combinations (energy shifts based on the bright exciton position are applied along the energy axis to clearly demonstrate energy stability); the black dashed lines represent the intrinsic mode positions of the collection microsphere, despite variations in the microsphere resonance positions, the characteristic energies of components A and B remain stable; (b) energies of components A and B versus the intrinsic mode energy of the collection microsphere, exhibiting energy-locking behavior independent of the WGM; (c) statistical distribution of energy differences relative to the bright exciton energy (E_b), with mean energy differences of 67.1 ± 5.5 meV and 87.6 ± 5.8 meV for components A and B, respectively.

3.2 能量锁定与统计标定

双微球远程系统的关键优势之一在于: 特征峰的出现并不依赖于激发端或收集端微球与待测峰严格共振的偶然增强. 为验证这一点, 我们在约 1.653–1.689 eV 的本征模态范围内更换不同微球组合分别作为激发端与收集端, 并在相同测量流程下重复获取远程收集端光谱. 需要指出的是, 不同器件间不可避免存在应变分布、局域介电环境与电荷掺杂差异^[22], 使得明激子的绝对能量位置可能发生漂移^[18, 23, 24]. 为消除这类样品间漂移对统计比较的影响, 我们以每一次测量中提取到的明激子能量 E_b 作为统一内标参考, 对各光谱能量轴进行对齐, 如图 2(a)所

示. 结果显示, 尽管收集端微球的 WGM 模态位置在不同组合间发生变化, 有两个成分峰——命名为成分 A(蓝) 与 B(橙)——的相对能量位置保持稳定, 未观察到随 WGM 改变而产生的可分辨漂移. 这种稳定性初步排除了特征峰源于微球本征模态偶然增强的可能.

在此基础上, 我们进一步对多个微球组合及不同材料区域的测量结果, 如图 2(b)所示. 可以看到, 成分 A(蓝) 与 B(橙) 的能量位置分别稳定分布在 1.691 eV 与 1.668 eV 附近, 且离散度较小. 这种跨微球组合、跨样品的一致性表明双微球远程耦合系统具有良好的可重复性, 且特征峰的能量位置对微球模态变化不敏感.

我们进一步将成分 A 与 B 的能量统一转换为相对明激子的能量差($\Delta E = E_b - E_{A/B}$). 基于明激子内标对齐的统计方法, 使得在不同微球模态与器件条件下对两特征峰进行可靠比较成为可能. 如图 2(c)所示, 成分 A(蓝) 与 B(橙) 的能量差分布均可用正态分布良好描述, 其平均值分别为 67.1 ± 5.5 meV 与 87.6 ± 5.8 meV.

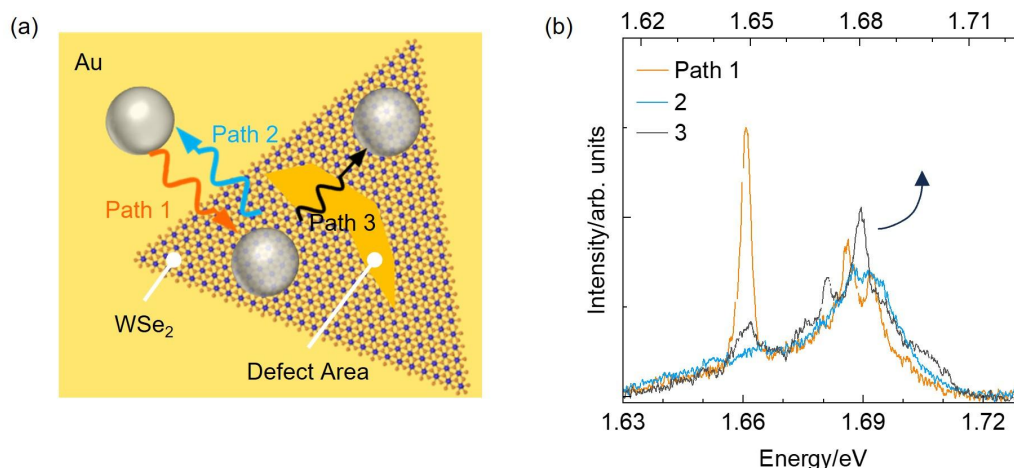


图 3 (a) 三种激发-收集路径示意图: 路径 1(金表面激发-材料收集)、路径 2(材料激发-金表面收集)、路径 3(含材料破损); (b) 三种路径的收集端 PL 光谱对比; 路径 3 光谱基于内标能量对齐, 参考上轴.

Fig. 3 (a) Schematic of three excitation-collection paths: Path 1 (gold surface excitation, material collection), Path 2 (material excitation, gold surface collection), and Path 3 (with material damage); (b) comparison of PL spectra at the collection side for the three paths; the spectrum of Path 3 is energy-aligned based on the bright exciton energy, see upper axis.

3.3 远程鲁棒性与缺陷敏感性

在此基础上, 我们设计了三种激发-收集路径(图 3(a)), 以比较两种组分在界面耦合与远程输运中的表现差异. 为排除金膜额外损耗对实验现象的影响, 我们在纯金平面上测量 633 nm 激发下的 SPPs 传播长度. 实验拟合得到的传播长度约

为 $14.17 \mu\text{m}$ ，与基于金在该波段光学常数估算的理论值 $12.92 \mu\text{m}$ 接近一致。该结果表明本文所用金膜在该波段能够支持量级为十余 μm 的界面传播，未见显著的额外散射损耗或异常衰减，从而为后续的路径对比实验提供了可用的界面传播条件^[13, 19]。

首先，在金表面微球激发、材料上微球收集的构型(图 3(a) 路径 1) 中，远程光谱出现两条可分辨特征：其一为位于 1.661 eV 的成分 B 相关峰，在该路径下占据主导地位，线宽约为 2.8 meV ；其二为位于 1.69 eV 的成分 A，但其相对强度仅为成分 B 的 58.4% ，且线宽增大至 5.4 meV (图 3(b)，橙色曲线)。相比之下，当交换激发与收集位置，即在材料上微球激发、金表面微球收集(图 3(a) 路径 2) 时，成分 B 信号几乎消失，而成分 A 亦明显减弱并表现出更显著的展宽(线宽约 14.9 meV)(图 3(b)，蓝色曲线)。在同一对微球仅交换激发端与收集端的条件下，两条谱线呈现截然不同的远程可见性，说明 A 与 B 两成分对远程读出链路的参与程度存在显著差异。需要指出的是：在同一微球激发、同一微球收集的同位耦合下，成分 B 同样可被清晰观测到，因此路径 2 中的衰减更可能反映其难以有效耦合进入远程读出通道(如，金表面 SPPs)^[13, 19]。

进一步地，当两微球之间存在宽度约 $1.76 \mu\text{m}$ 的材料破损(图 3(a) 路径 3) 时，在远程光谱中仍可观测到 1.680 eV 附近的成分 A 相关峰(略微蓝移可能来源于局域应变不均)，但在对应能量差位置未观察到成分 B 的出现(图 3(b)，黑色曲线)。该结果表明，成分 A 在存在局部破损扰动时仍可被远程读出，而成分 B 对局域缺陷更为敏感^[9, 14, 17]。综合路径 1–3 的实验结果可知：成分 A 表现出显著的远程传播鲁棒性，而成分 B 表现出强烈的路径选择性与缺陷敏感性。上述差异为后续关于区分二者耦合机制及物理归属的讨论提供了实验依据。

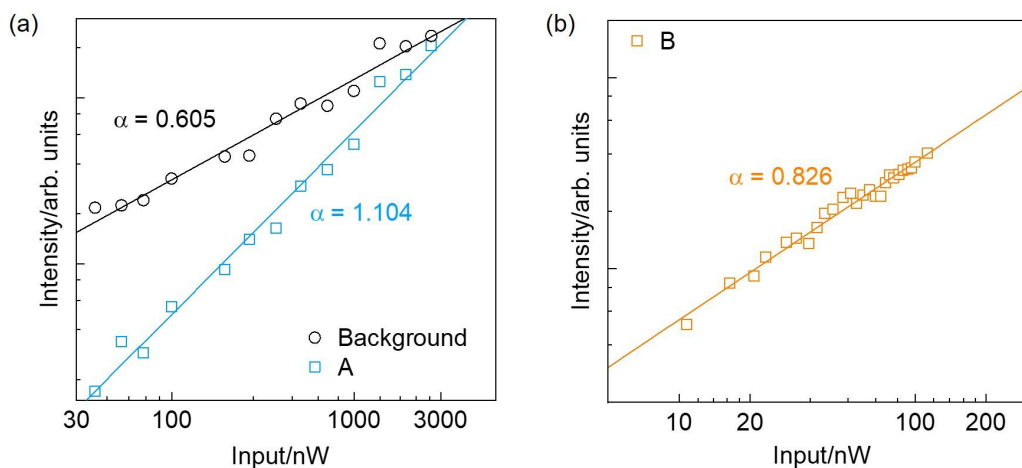


图 4 (a) 背景缺陷态(黑, $\alpha = 0.605$) 与成分 A(蓝, $\alpha = 1.104$) 的功率依赖双对数曲线; (b) 成

分 B(橙, $\alpha = 0.826$) 的功率依赖曲线.

Fig. 4 (a) Double-logarithmic plots of power dependence for background defect states (black, $\alpha = 0.605$) and component A (blue, $\alpha = 1.104$); (b) power dependence curve for component B (orange, $\alpha = 0.826$).

3.4 功率依赖验证

为进一步区分两成分峰与缺陷背景的辐射机制, 我们开展了激发功率依赖的 PL 测量, 并采用幂律关系 $I \propto P^\alpha$ 对积分强度 I 与激发功率 P 的关系进行拟合, 拟合指数 α 如图 4 所示. 实验结果表明, 背景光谱成分呈现显著亚线性响应($\alpha = 0.605$). 该强亚线性行为通常与有限态密度导致的饱和相一致: 当辐射通道由有限数量的局域复合中心或束缚态主导时, 随功率升高其占据更容易趋于饱和, 从而抑制发光强度的进一步增长^[9, 14, 25].

相比之下, 成分 A 的幂律指数为 $\alpha = 1.104$, 略呈超线性, 表明其发光过程不受上述强饱和机制主导, 并更接近于由激子相关通道控制的响应^[4, 25, 26]; 轻微超线性可能与功率升高后载流子俘获、散射路径变化、态填充或多体相互作用等因素有关. 成分 B 的幂律指数为 $\alpha = 0.826$, 虽然仍表现出一定程度的亚线性, 但明显高于缺陷背景的 $\alpha = 0.605$, 表明其辐射过程同样不同于强饱和的局域背景通道, 更可能反映了激子相关辐射在非理想条件下受到散射、去相干或热化瓶颈的影响而呈现温和饱和趋势^[3, 25, 27].

综上, 功率依赖结果进一步支持 A 与 B 均非缺陷态饱和主导的发光成分, 同时二者复合动力学存在差异. 功率幂律在此作为排除缺陷背景并表征动力学差异的辅助证据, 成分归属将在第 4 节结合路径对比与能量标定统一讨论.

4 成分 A、B 的起源讨论

4.1 传播非对称性与耦合机制

基于 3.3 节的路径互换与同位耦合对照, 我们确认成分 B 在局域激发-局域收集条件下可被清晰观测, 因而其在路径 2 中的显著衰减并非源于“无法被光激发产生”, 而更可能受限于其远程读出链路(发射-耦合-传播-出射-收集的整体效率)^[13, 19, 28]. 因此, A 与 B 的“材料依赖性”更直接地反映了两者在界面模近场耦合与远程传播尺度筛选中的参与程度差异.

成分 A 在路径 1 和路径 2 均表现出较强的远程读出信号. 揭示其对应的辐射存在近场分量, 更容易与金属界面的 SPP 或相关表面可传播模耦合, 从而实现远程读出^[13, 19, 29]. 我们实验测得金表面 633 nm 泵浦对应的 SPP 传播长度约 14.17

μm , 与 A 在约 $16.08 \mu\text{m}$ 距离下仍可被有效读出的现象在量级上相符. 相比之下, 成分 B 在路径 1 中读出强度极大, 证明 B 同样可被局域场增强激发; 但路径 2 中的显著衰减表明其辐射发光与金属 SPPs 的耦合效率更低. 由于在同位收集条件下, B 可被观测到, 所以上述结果表明, B 并非“未被产生”, 而是“难以有效耦合进入远程读出通道(例如沿裸金表面传播的 SPPs)”^[13, 19, 29].

此外, 3.3 节的破损对比为上述判断提供了补充约束: 在存在约 $1.76 \mu\text{m}$ 材料破损的情况下, A 仍能被远程读出, 而成分 B 几乎完全消失. 该对比表明 B 对应的辐射过程对晶格完整性与局域环境高度敏感, 破损可能引入应变梯度、无序与额外的非辐射复合中心, 从而更强烈地抑制该通道的辐射效率^[9, 14, 17, 30]. 相反, A 表现出更高的鲁棒性, 其远程读出受界面可传播模耦合(SPPs) 主导, 对材料局部破损具有更强的耐受性.

综上, 我们认为 A 成分辐射复合可能具有更高的 SPPs 耦合活性, 对应典型激子态包括自旋暗态及其带电复合态、动量暗态等^[1, 3, 5, 13, 31]; 而 B 成分的辐射复合通道对于远场出射、并对晶格完整性和局域环境更敏感, 更可能源于声子辅助辐射的暗态、或与局域态束缚态等相关的复合过程^[3, 4, 32-34].

4.2 功率依赖、能量与线宽对成分归属的约束

功率依赖结果为成分归属提供了动力学约束. 成分 A 和 B 的指数 α 均显著区别于缺陷背景的结果表明: A 与 B 的发光过程均非由缺陷态饱和主导, 更符合激子相关通道在不同复合动力学限制下的响应特征^[4, 25-27]. 对成分 A 而言, 近线性响应说明其发光强度在当前功率范围内主要受激子产生率控制, 轻微超线性可能与功率升高时载流子捕获形成激子复合体; 对成分 B 而言, 中等亚线性表明其辐射效率随功率升高呈现温和饱和趋势, 可能反映了声子辅助散射通道的有限速率或激子-声子相互作用的逐渐显现^[3, 4, 33-35].

能量标定与线宽特征为两种成分的归属提供了进一步的约束. 以明激子为内标, 成分 A 相对明激子的能量差为 $67.1 \pm 5.5 \text{ meV}$, 成分 B 相对明激子红移 $87.6 \pm 5.8 \text{ meV}$; 因此 B 相对于 A 进一步红移约 $20.6 \pm 0.3 \text{ meV}$. 该能量差与单层 WSe_2 中 E'' 声子模式能量(约 21.8 meV)^[3, 4, 33, 34]在量级上接近, 表明 B 可能源于对应 A 激子态的声子辅助发光. 与此同时, 两者线宽存在明显差异, 成分 B 线宽约 2.8 meV , 较成分 A(约 5.4 meV) 更窄. 我们认为, A 较大的线宽主要反映了更显著的非均匀展宽. 对于低温下单层 WSe_2 的 PL 谱而言, 局域电荷起伏、残余掺杂引起的载流子

密度不均匀、局域应变以及 Au/WSe₂ 交界附近介电屏蔽环境的差异, 都会使同类激子相关辐射通道在不同空间位置具有略有不同的中心能量, 从而导致谱线展宽. 结合实验上 A 在路径互换和局部破损条件下仍保持较强远程可读性这一现象, 可以推断 A 通道的信号可能同时来自完整材料区、界面扰动区以及受局域缺陷影响的区域; 由于这些区域对应的发光峰位并不完全一致, 便在积分探测下表现为更宽的有效线宽. 此外, 也不能排除 A 所在的能量位置仍包含多个能量接近的辐射分量叠加, 这同样可能导致其线宽增大. 相比之下, 若将 B 视为与 A 相关的声子辅助辐射支路, 则其谱线仅由 A 成分中满足电子-声子耦合、能量守恒及远程读出条件的那部分母态贡献, 而其他的展宽成分并不能与声子相互作用复制频移. 结合 B 在路径交换和局部破损条件下显著减弱的现象, 可以认为局域无序和晶格破坏对 B 的主要作用是抑制该声子辅助通道的形成和耦合, 而非仅引起峰位漂移. 因此, 最终能够贡献 B 信号的主要是局域环境更均匀、晶格更完整且满足声子辅助辐射条件的区域, 对应的初始态分布更窄, 因而表现出较小的线宽^[36-38].

基于传播路径、缺陷敏感性及功率依赖、能量位置与线宽特征的综合分析, 我们倾向于将 A 归类为与界面耦合更强、对局域环境敏感性更高的暗态相关发光成分(候选包括暗激子相关复合体及其带电形式等)^[1, 5, 13, 31, 39], 而将 B 归类为声子参与、对局域电荷环境相对不敏感但传播受限的发光成分(候选包括暗态相关声子辅助支路或复制峰等)^[3, 4, 32-35, 40]. 明确的成分归属有待在后续工作中, 结合现有的实验体系, 借助偏振分辨磁场调控、可控应力调制以及时间分辨荧光寿命测量的实验方法, 从协同性响应、能量变化规律和动力学特征等方面建立更完整的实验判据, 为明确成分 A 和 B 的归属提供更直接的证据.

5 结 论

本文提出双介电微球远程耦合的 PL 测量方案, 在“边缘激发-远程收集”构型下, 实现了基于传播尺度的背景筛选与激子辐射近场选择性增强. 通过更换微球模态并进行多器件统计, 观测到两特征峰呈现能量锁定, 并以明激子为内标获得了稳定的能量差分布. 结合传播路径分析、缺陷敏感性及功率依赖特性, 表明 A 与 B 成分具有不同的远程耦合与缺陷响应特征: 成分 A 表现出更强的远程传播鲁棒性并呈近线性功率响应, 而成分 B 则对材料缺陷更为敏感并呈现出亚线性的功率响应. 该方法为二维材料中暗态及相关复合体的远程筛选与初步鉴定提供了一种可重复的谱学工具.

参考文献

- [1] Malic E, Selig M, Feierabend M, Brem S, Christiansen D, Wendler F, Knorr A, Berghäuser G 2018 *Phys. Rev. B* **2** 201113
- [2] Zhang X-X, You Y, Zhao S Y F, Heinz T F 2015 *Phys. Rev. Lett.* **115** 257403
- [3] Liu E, van Baren J, Lu Z, Altairy M M, Taniguchi T, Watanabe K, Smirnov D, Lui C H 2019 *Phys. Rev. Lett.* **123** 027401
- [4] Li Z, Wang T, Jin C, Lu Z, Lian Z, Meng Y, Blei M, Gao S, Taniguchi T, Watanabe K, Ren T, Tongay S, Yang L, Smirnov D, Cao T, Shi S-F 2019 *Nat. Commun.* **10** 2469
- [5] Zhang X-X, Cao T, Lu Z, Lin Y-C, Zhang F, Wang Y, Li Z, Hone J C, Robinson J A, Smirnov D, Louie S G, Heinz T F 2017 *Nat. Nanotechnol.* **12** 883
- [6] Yu Y, Zhang W-J, Zhao W-Y, Lin X, Jin Z-M, Liu W-M, Ma G-H 2019 *Acta Phys. Sin.* **68** 017201 (in Chinese) [俞洋, 张文杰, 赵婉莹, 林贤, 金钻明, 刘伟民, 马国宏 2019 物理学报 **68** 017201]
- [7] Dong S, Li Y 2023 *Phys. Rev. B* **107** 235147
- [8] Dong S, Chen Y, Qu H, Lou W-K, Chang K 2025 *Phys. Rev. Lett.* **134** 066602
- [9] Chow P K, Jacobs-Gedrim R B, Gao J, Lu T-M, Yu B, Terrones H, Koratkar N 2015 *ACS Nano* **9** 1520
- [10] Tao G-Y, Qi P-F, Dai Y-C, Shi B-B, Hang Y-J, Zhang T-H, Fang Z-Y 2022 *Acta Phys. Sin.* **71** 087801 (in Chinese) [陶广益, 齐鹏飞, 戴宇琛, 石蓓蓓, 黄逸婧, 张天浩, 方哲宇 2022 物理学报 **71** 087801]
- [11] Shang J, Shen X, Cong C, Peimyoo N, Cao B, Eginligil M, Yu T 2015 *ACS Nano* **9** 647

- [12] Yang S, Wang Y, Sun H 2015 *Adv. Opt. Mater.* **3** 1136
- [13] Zhou Y, Scuri G, Wild D S, High A A, Dibos A, Jauregui L A, Shu C, De Greve K, Pistunova K, Joe A Y, Taniguchi T, Watanabe K, Kim P, Lukin M D, Park H 2017 *Nat. Nanotechnol.* **12** 856
- [14] Zheng Y J, Chen Y, Huang Y L, Gogoi P K, Li M-Y, Li L-J, Trevisanutto P E, Wang Q, Pennycook S J, Wee A T S, Quek S Y 2019 *ACS Nano* **13** 6050
- [15] Uddin S Z, Kim H, Lorenzon M, Yeh M, Lien D-H, Barnard E S, Htoon H, Weber-Bargioni A, Javey A 2020 *ACS Nano* **14** 13433
- [16] Cordovilla Leon D F, Li Z, Jang S W, Cheng C-H, Deotare P B 2018 *Appl. Phys. Lett.* **113** 252101
- [17] Pandey J, Soni A 2019 *Appl. Surf. Sci.* **463** 52
- [18] Goodman A J, Lien D H, Ahn G H, Spiegel L L, Amani M, Willard A P, Javey A, Tisdale W A 2020 *J. Phys. Chem. C.* **124** 12175
- [19] Zhang H, Abhiraman B, Zhang Q, Miao J, Jo K, Roccasecca S, Knight M W, Davoyan A R, Jariwala D 2020 *Nat. Commun.* **11** 3552
- [20] Yu H-K, Liu B-D, Wu W-L, Li Z-Y 2019 *Acta Phys. Sin.* **68** 149101 (in Chinese) [虞华康, 刘伯东, 吴婉玲, 李志远 2019 物理学报 **68** 149101]
- [21] Deilmann T, Thygesen K S 2017 *Phys. Rev. B* **96** 201113
- [22] Hoo Q-Y, Xu Y 2022 *Acta Phys. Sin.* **71** 127102 (in Chinese) [胡倩颖, 许杨 2022 物理学报 **71** 127102]
- [23] Godde T, Schmidt D, Schmutzler J, Abmann M, Debus J, Withers F, Alexeev E M, Del Pozo-Zamudio O, Skrypkina O V, Novoselov K S, Bayer M, Tartakovskii A I 2016 *Phys. Rev. B* **94** 165301

- [24] Moody G, Kavir Dass C, Hao K, Chen C-H, Li L-J, Singh A, Tran K, Clark G, Xu X, Berghäuser G, Malic E, Knorr A, Li X 2015 *Nat. Commun.* **6** 8315
- [25] Perea-Causín R, Brem S, Rosati R, Jago R, Kulig M, Ziegler J D, Zipfel J, Chernikov A, Malic E 2019 *Nano Lett.* **19** 7317
- [26] Courtade E, Semina M, Manca M, Glazov M M, Robert C, Cadiz F, Wang G, Taniguchi T, Watanabe K, Pierre M, Escoffier W, Ivchenko E L, Renucci P, Marie X, Amand T, Urbaszek B 2017 *Phys. Rev. B* **96** 085302
- [27] He M, Rivera P, Van Tuan D, Wilson N P, Yang M, Taniguchi T, Watanabe K, Yan J, Mandrus D G, Yu H, Dery H, Yao W, Xu X 2020 *Nat. Commun.* **11** 618
- [28] Mrejen M, Yadgarov L, Levanon A, Suchowski H 2019 *Sci. Adv.* **5** eaat9618
- [29] Sun J, Li Y, Hu H, Chen W, Zheng D, Zhang S, Xu H 2021 *Nanoscale* **13** 4408
- [30] Kastl C, Koch R J, Chen C T, Eichhorn J, Ulstrup S, Bostwick A, Jozwiak C, Kuykendall T R, Borys N J, Toma F M, Aloni S, Weber-Bargioni A, Rotenberg E, Schwartzberg A M 2019 *ACS Nano* **13** 1284
- [31] Li Z, Wang T, Lu Z, Khatoniar M, Lian Z, Meng Y, Blei M, Taniguchi T, Watanabe K, McGill S A, Tongay S, Menon V M, Smirnov D, Shi S-F 2019 *Nano Lett.* **19** 6886
- [32] Liu E, van Baren J, Liang C-T, Taniguchi T, Watanabe K, Gabor N M, Chang Y-C, Lui C H 2020 *Phys. Rev. Lett.* **124** 196802
- [33] del Corro E, Botello-Méndez A, Gillet Y, Elias A L, Terrones H, Feng S, Fantini C, Rhodes D, Pradhan N, Balicas L, Gonze X, Charlier J C, Terrones M, Pimenta M A 2016 *Nano Lett.* **16** 2363
- [34] Chow C M, Yu H, Jones A M, Yan J, Mandrus D G, Taniguchi T, Watanabe K,

- Yao W, Xu X 2017 *Nano Lett.* **17** 1194
- [35] Sohler T, Ponomarev E, Gibertini M, Berger H, Marzari N, Ubrig N, Morpurgo A F 2019 *Phys. Rev. X* **9** 031019
- [36] Lindlau J, Selig M, Neumann A, Colombier L, Förste J, Funk V, Förg M, Kim J, Berghäuser G, Taniguchi T, Watanabe K, Wang F, Malic E, Högele A 2018 *Nat. Commun.* **9** 2586
- [37] Wang T, Miao S, Li Z, Meng Y, Lu Z, Lian Z, Blei M, Taniguchi T, Watanabe K, Tongay S, Smirnov D, Shi S-F 2019 *Nano Lett.* **20** 694
- [38] Yang J, Xu R, Pei J, Myint Y W, Wang F, Wang Z, Zhang S, Yu Z, Lu Y 2015 *Light:Sci. Appl.* **4** e312
- [39] Zhou B T, Taguchi K, Kawaguchi Y, Tanaka Y, Law K T 2019 *Commun. Phys.* **2** 26
- [40] Molas M R, Faugeras C, Slobodeniuk A O, Nogajewski K, Bartos M, Basko D M, Potemski M 2017 *2D Mater.* **4** 021003

Dual-Microsphere Remote Coupling Enabling Separation of Exciton and Complexes States*

ZHANG Junyuan ZHANG Xinyu ZHANG Jingru FENG Xialian GU Fuxing YU Jiabin[†]

(School of Optical-Electrical and Computer Engineering, University of Shanghai for Science and
Technology, Shanghai 200093, China)

Abstract

Monolayer transition metal dichalcogenides host rich excitonic states, including bright excitons, dark excitons, charged complexes, and phonon-assisted sidebands, and therefore provide an important platform for studying low-dimensional excitonic many-body physics. However, in low-temperature photoluminescence measurements, weak excitonic features are often buried under broad defect-related emission, making reliable spectral separation and identification difficult. In this work, a low-temperature photoluminescence scheme based on dual-dielectric-microsphere remote coupling is developed to realize edge excitation and remote detection of excitonic emission in monolayer WSe₂. Two fused-silica microspheres with diameters of about 6 μm and a separation of 10-20 μm are used as the excitation and detection terminals, respectively. By taking advantage of the difference in effective propagation length between localized defect emission and propagating excitonic channels, together with mode-selective near-field coupling at the interface, the proposed geometry suppresses broad background emission and enhances weak exciton-related spectral features without applying external-field modulation. Experimental results show that, compared with center excitation, edge excitation increases the photoluminescence intensity by about 2.35 times and enables more stable observation of characteristic narrow peaks under remote detection. Systematic measurements performed under different microsphere resonance conditions and on different device regions reveal two robust spectral components, denoted as A (~ 1.691 eV) and B (~ 1.668 eV), whose energies remain locked relative to the bright exciton. Statistical analysis

gives stable energy offsets of 67.1 ± 5.5 meV and 87.6 ± 5.8 meV for A and B, respectively. Further evidence from path-interchange measurements, local-damage perturbation, and power-dependent photoluminescence shows that the two components exhibit clearly different behaviors in the remote detection process: component A is more robust in long-range readout and shows an approximately linear power dependence ($\alpha = 1.104$), whereas component B is more sensitive to path variation and local damage and exhibits a sublinear power dependence ($\alpha = 0.826$). These results indicate that component A is more likely associated with a dark-state-related excitonic complex with stronger interfacial coupling, while component B is more likely related to a phonon-assisted branch or replica of a dark-state-related excitation. The present method provides an effective optical approach for suppressing defect background, enhancing weak excitonic channels, and performing preliminary spectroscopic identification of dark-state-related emission and exciton complexes in nonideal two-dimensional semiconductors.

Keywords: two-dimensional semiconductor, exciton complexes, long-range coupling, spectral detection

PACS: 68.65.-k, 71.35.Ji, 71.35.-y, 78.55.-m

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 12074259, 62122054).

† Corresponding author. E-mail: yujiaxin@usst.edu.cn
The first author. E-mail: zhangjunyuan@st.usst.edu.cn