

二维方形量子点体系等离激元的量子化

吴仍来 肖世发 薛红杰 全军

Quantization of plasmon in two-dimensional square quantum dot system

Wu Reng-Lai Xiao Shi-Fa Xue Hong-Jie Quan Jun

引用信息 Citation: [Acta Physica Sinica](#), 66, 227301 (2017) DOI: 10.7498/aps.66.227301

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.227301>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2017/V66/I22>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

[二维方形量子点体系等离激元的量子化](#)

[Quantization of plasmon in two-dimensional square quantum dot system](#)

物理学报.2017, 66(22): 227301 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.227301>

[``θ"型谐振腔结构的光学透射特性](#)

[Transmission characteristics of surface plasmon polaritons in ``θ"-shaped resonator](#)

物理学报.2017, 66(1): 017301 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.017301>

[一维原子链局域等离激元的非线性激发](#)

[Nonlinear excitation of localized plasmon in one-dimensional atomic chain](#)

物理学报.2016, 65(8): 087301 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.087301>

[环形狭缝腔阵列光学特性的研究](#)

[Finite difference time domain simulation of optical properties of annular cavity arrays](#)

物理学报.2015, 64(22): 227301 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.227301>

[石墨烯基双曲色散特异材料的负折射与体等离子体性质](#)

[Negative refraction and bulk polariton properties of the graphene-based hyperbolic metamaterials](#)

物理学报.2015, 64(6): 067301 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.067301>

二维方形量子点体系等离激元的量子化*

吴仍来¹⁾ 肖世发¹⁾ 薛红杰²⁾ 全军¹⁾†

1) (岭南师范学院物理科学与技术学院, 湛江 524048)

2) (西安航空学院电子工程学院, 西安 710077)

(2017年5月19日收到; 2017年8月19日收到修改稿)

量子点体系等离激元的研究是光电子学领域的热点。为进一步加深和完善对等离激元的量子效应的认识, 本文利用紧束缚近似和线性响应理论研究了二维方形量子点体系对外场的集体响应。结果表明, 当外场频率等于等离激元的频率时, 量子点体系会有强烈的电荷振荡, 并伴随着能量的极大吸收和近场的增强。在量子点中, 等离子体存在分立的元激发。等离子体元激发的个数将随着量子点尺寸和电子个数的增加而增加。随量子点尺寸的增加, 分立的等离激元将逐步呈现准连续的特性, 即过渡为经典连续的等离激元, 其频谱曲线演化为经典的色散曲线。结果还表明: 随量子点尺寸的增加, 等离激元的频率会红移, 等离激元的激发强度会增大; 随量子点中电子数的增加, 等离激元的频率会蓝移, 等离激元的激发强度会增大。

关键词: 二维方形量子点, 等离激元, 量子化

PACS: 73.20.Mf, 73.21.-b, 78.67.-n

DOI: 10.7498/aps.66.227301

1 引言

随着纳米科技的发展, 量子点体系等离激元的研究已成为光电子学领域最受人瞩目的研究课题之一, 其独特的突破衍射极限和近场增强特性帮助人们在光学传感^[1]、单分子信号检测^[2]、光谱学^[3]、太阳能^[4,5]、化学反应^[6]和生物治疗^[7]等方面取得了突破性的成果。在等离激元的研究过程中, 尺寸小于10 nm以下的单个纳米颗粒中等离激元的激发问题引起了人们的兴趣, 因为10 nm尺寸以下的单个纳米颗粒中, 经典物理开始失效, 粒子会表现出与相同块状材料体系不同的奇异物理特性。数十年, 科学界一直在探索纳米颗粒体系中的等离激元, 随着纳米技术和扫描隧道显微技术的发展, 实验上已经实现了纳米颗粒体系的等离激元的探测。2012年, 斯坦福大学的实验工作者给单个微观颗粒体系等离激元的研究做出了定论: 在微观结构体系中, 10 nm以下单个纳米颗粒的等离激元的行

为是量子化的^[8]。随着这项成果的发表, 研究人员在近几年做过很多这方面的研究: Gao课题组^[9,10]利用局域密度近似下的含时密度泛函理论研究了线性金属原子链中的端点和中心模式的等离激元, Cassidy等^[11]利用线性响应理论和无规相近似, 探索了等离激元在金属纳米线体系中的构造, 研究了一维体系随尺度的变化单粒子激发到经典等离激元的转变过程; Nordlander课题组^[12]利用含时的局域密度近似, 给出了一个量子动力学方案研究了分离的两个纳米二聚物中的等离子体共振, 发现两个聚合物的距离低于1 nm时, 量子效应开始影响等离激元的性质, 相比于经典预测结果, 会大大降低电磁场增强; Li课题组^[13]利用实空间的无规相近似和电子-空穴对基研究了零维纳米团簇到二维超薄薄膜体系量子等离激元的朗道阻尼; Moaied等^[14]利用动力学理论中的维格纳方程研究了介电函数近似为零的超材料中量子等离激元的传播和色散特性, 发现量子等离激元的传播长度远远大于经典的计算结果。上述研究为等离激元的量子效应

* 国家自然科学基金(批准号:11647156)和广东省自然科学基金(批准号:2014A030307035)资助的课题。

† 通信作者。E-mail: quanj@lingnan.edu.cn

和尺寸效应提供了很多有意义的结果。但这些工作没有明确给出微观体系等离激元量子模式的完备解，没有讨论量子等离激元激发频率的离散分布情况。

为进一步加深和完善对等离激元的量子效应的认识，解决等离激元量子模式向经典模式的过渡问题，本文引用线性响应理论来研究二维方形量子点的等离激元。基于线性响应理论的计算结果，对二维方形量子点体系等离激元的量子化机制进行了研究，分析了随量子点尺寸变化量子等离激元向经典等离激元的转变和过渡问题，并系统地讨论了量子点的尺寸和电子数目对等离激元的模式、激发强度的影响。

2 理论模型与公式

基于紧束缚和平均场近似，忽略电子的自旋，量子点体系的哈密顿量在频谱空间可表示为^[15]

$$\begin{aligned} H &= -\gamma \sum_{\mathbf{l}, \mathbf{l}'} (d_{\mathbf{l}}^+ d_{\mathbf{l}'} + \text{h.c.}) + \sum_{\mathbf{l}} e V_{\mathbf{l}}^{\text{ex}}(\omega) d_{\mathbf{l}}^+ d_{\mathbf{l}} \\ &+ \sum_{\mathbf{l}} \left(U \delta\langle n_{\mathbf{l}}(\omega) \rangle + V \sum_{\mathbf{l}'} \delta\langle n_{\mathbf{l}'}(\omega) \rangle \right) n_{\mathbf{l}}, \quad (1) \end{aligned}$$

其中 γ 为跃迁矩阵元，由 γ 可确定电子的能带宽为 4γ ， \mathbf{l} 和 \mathbf{l}' 为电子的坐标， $d_{\mathbf{l}}^+$ 和 $d_{\mathbf{l}}$ 分别为产生和湮灭算符，h.c. 表示 $d_{\mathbf{l}}^+ d_{\mathbf{l}'}$ 的复共轭， e 表示单个电子所带的电荷量， $V_{\mathbf{l}}^{\text{ex}}(\omega)$ 为含时外扰电势， ω 表示频率， U 为电子受到自身格点的库仑作用， V 为最近邻格点对电子的库仑作用； $n_{\mathbf{l}} = d_{\mathbf{l}}^+ d_{\mathbf{l}}$ 。 $\delta\langle n_{\mathbf{l}}(\omega) \rangle$ 为体系对外场的电荷数响应，满足 $\langle n_{\mathbf{l}}(\omega) \rangle = \langle n_{\mathbf{l}} \rangle_0 + \delta\langle n_{\mathbf{l}}(\omega) \rangle$ ， $\langle n_{\mathbf{l}} \rangle_0$ 为无扰动下的平均电荷数。由于与时间无关的项不会影响体系的动力学性质， $\langle n_{\mathbf{l}} \rangle_0$ 可以忽略。设 $\psi_n(\mathbf{l})$ 和 E_n 分别为二维方形量子点体系电子的本征波函数和本征能量，对于处于无限深方势阱中的二维方形量子点体系，有

$$\begin{cases} \psi_n(\mathbf{l}) = \sqrt{\frac{4}{L_x L_y}} \sin\left(\frac{m_x \pi}{L_x} l_x\right) \sin\left(\frac{m_y \pi}{L_y} l_y\right) \\ E_n = -2\gamma \cos\left(\frac{m_x \pi}{L_x}\right) - 2\gamma \cos\left(\frac{m_y \pi}{L_y}\right) \end{cases} \quad (2)$$

$$m_x = 1, 2, 3 \cdots N_x, \quad m_y = 1, 2, 3 \cdots N_y,$$

其中 L_x 和 L_y 分别为二维方形量子点的长度和宽度，且 $L_x = N_x + 1$ ， $L_y = N_y + 1$ ， N_x 和 N_y 分别表

示横向和纵向上的格点数。基于线性响应理论，电荷数对含时微扰的响应为^[16–18]：

$$\begin{aligned} &\delta\langle n_{\mathbf{l}}(\omega) \rangle \\ &= \sum_{\mathbf{l}'} \boldsymbol{\Pi}(\mathbf{l}, \mathbf{l}', \omega) \left[e V_{\mathbf{l}'}^{\text{ex}}(\omega) + U \delta\langle n_{\mathbf{l}'}(\omega) \rangle \right. \\ &\quad \left. + V \sum_{\mathbf{l}''} \langle \delta n_{\mathbf{l}''}(\omega) \rangle \right], \quad (3) \end{aligned}$$

其中 $\boldsymbol{\Pi}(\mathbf{l}, \mathbf{l}', \omega)$ 为林哈德函数

$$\begin{aligned} \boldsymbol{\Pi}(\mathbf{l}, \mathbf{l}', \omega) &= 2 \sum_{mn} \frac{f(E_m) - f(E_n)}{E_m - E_n - \omega - \gamma} \psi_m^*(\mathbf{l}) \psi_n(\mathbf{l}) \\ &\times \psi_n^*(\mathbf{l}') \psi_m(\mathbf{l}'). \quad (4) \end{aligned}$$

(3) 式可简化为

$$\begin{aligned} &\delta\langle n_{\mathbf{l}}(\omega) \rangle - \sum_{\mathbf{l}', \mathbf{l}''} \boldsymbol{\Pi}(\mathbf{l}, \mathbf{l}', \omega) \mathbf{v}_{\mathbf{l}' \mathbf{l}''} \delta\langle n_{\mathbf{l}''}(\omega) \rangle \\ &= \sum_{\mathbf{l}'} \boldsymbol{\Pi}(\mathbf{l}, \mathbf{l}', \omega) e V_{\mathbf{l}'}^{\text{ex}}(\omega), \quad (5) \end{aligned}$$

其中

$$\mathbf{v}_{\mathbf{l}' \mathbf{l}''} = \begin{cases} U, & |\mathbf{l}' - \mathbf{l}''| = 0 \\ V, & |\mathbf{l}' - \mathbf{l}''| = 1 \\ 0, & \text{其他} \end{cases}. \quad (6)$$

又 $Q_{\mathbf{l}}(\omega) = e \delta\langle n_{\mathbf{l}}(\omega) \rangle$ ，则

$$\begin{aligned} Q_{\mathbf{l}}(\omega) &- \sum_{\mathbf{l}', \mathbf{l}''} \boldsymbol{\Pi}(\mathbf{l}, \mathbf{l}', \omega) \mathbf{v}_{\mathbf{l}' \mathbf{l}''} Q_{\mathbf{l}''}(\omega) \\ &= e^2 \sum_{\mathbf{l}'} \boldsymbol{\Pi}(\mathbf{l}, \mathbf{l}', \omega) V_{\mathbf{l}'}^{\text{ex}}(\omega). \quad (7) \end{aligned}$$

整理 (7) 式可得

$$\begin{aligned} &\sum_{\mathbf{l}'} \left[\delta_{\mathbf{l}\mathbf{l}'} - \sum_{\mathbf{l}''} \boldsymbol{\Pi}(\mathbf{l}, \mathbf{l}'', \omega) \mathbf{v}_{\mathbf{l}'' \mathbf{l}'} \right] Q_{\mathbf{l}'}(\omega) \\ &= e^2 \sum_{\mathbf{l}'} \boldsymbol{\Pi}(\mathbf{l}, \mathbf{l}', \omega) V_{\mathbf{l}'}^{\text{ex}}(\omega), \quad (8) \end{aligned}$$

此式即为方形量子点中电荷对外场的响应方程，通过本方程的求解即可完成等离激元的相关计算。

3 结果与分析

计算中 $U = 1.5$ ， $V = 1$ ， $\gamma = 1$ 。 $\hbar\omega$ 以 γ 为基本单位，约化为频率 ω ，其他物理量均采用任意单位^[9,10]。方形量子点中的电子数用 N_e 表示，电子密度用 n_e 表示， $n_e = N_e/N_a$ ， N_a 为总格点数。文献^[18]指出 $V_{\mathbf{l}}^{\text{ext}}(\omega) = -(\mathbf{l}_x + \mathbf{l}_y) e^{-i\omega t}$ 即可激发等

离激元的所有偶极模式, 因此文中也采用该势。对于方形二维量子点结构, 其内部电荷满足

$$Q = \sum_l Q_l(\omega), \quad (9)$$

该结构的偶极矩可表示为

$$P(\omega) = \sum_l l Q_l(\omega). \quad (10)$$

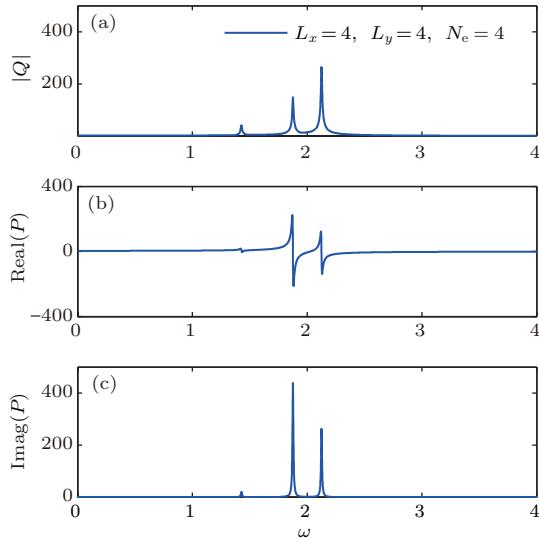


图1 响应函数随外场频率的变化 (a) 电荷的绝对值; (b) 偶极矩的实部; (c) 偶极矩的虚部

Fig. 1. Response functions vary with the frequency of the external field: (a) The absolute value of the charge; (b) the real part of the dipole moment; (c) the imaginary part of the dipole moment.

图1(a)给出了电荷的绝对值随外场频率的变化, 从图1(a)所示结果可观察出明显的峰状结构, 其峰的个数正好对应方形量子点中等离子体的元激发个数。在外场作用下, 如果 $L_x = L_y = 4$, $N_e = 4$, 电荷有三个共振峰, 共振峰所在的位置正好对应等离激元的3个激发频率。从结果来看一个量子点体系在多个频率点将出现电子的集体振荡, 这就是等离激元量子化的结果, 这种行为类似于晶格振动的能量量子化行为。图1(b)和图1(c)分别给出了偶极矩的实部和虚部随外场频率的变化。偶极矩的实部代表电偶极矩的大小, 虚部代表能量吸收。图示结果显示在电荷共振峰位置, 偶极矩的实部出现巨大涨落, 虚部在出现极大值。此结果说明在外场作用下, 等离激元激发时量子点中会发生巨大的偶极振荡, 偶极振荡的整体效果表现为电偶极矩反转, 同时伴随着能量的极大吸收, 此结果与 Muniz 等^[19] 和 Yu 等^[20–22] 之前的研究结果类似。

根据文献[9, 10]的处理方法, 本文采用偶极矩的虚部作为响应函数来给出等离激元。

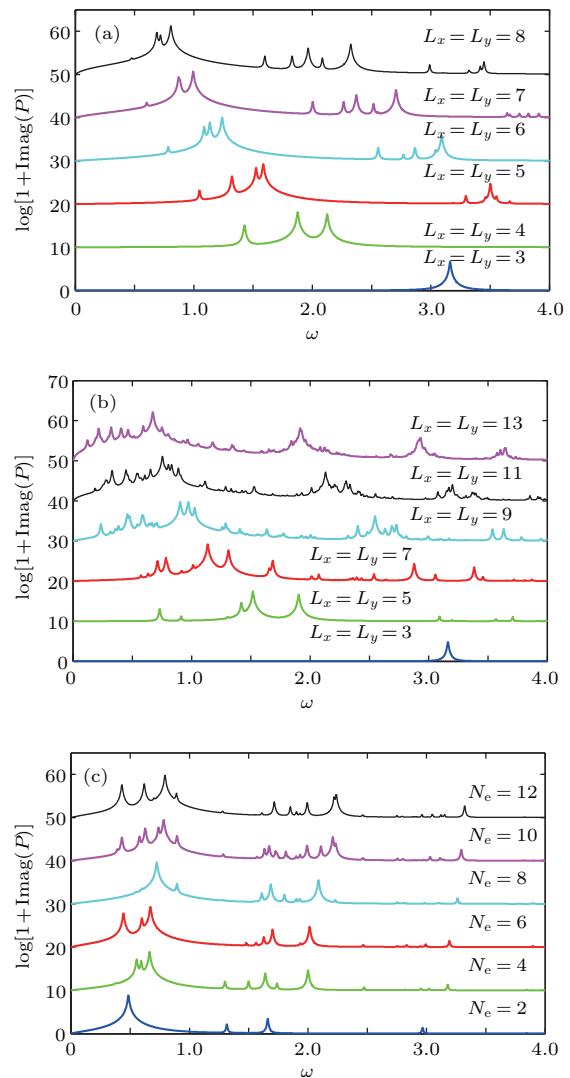


图2 (网刊彩色) 偶极响应函数随外场频率的变化 (a) 固定电子数 $N_e = 4$; (b) 固定电子密度 $n_e = 1$; (c) 固定量点尺寸 $L_x = L_y = 9$

Fig. 2. (color online) The dipole response functions vary with the frequency of the external field: (a) For a fixed electron number $N_e = 4$; (b) for a fixed electron density $n_e = 1$; (c) for a fixed size of quantum dot $L_x = L_y = 9$.

图2(a)和图2(b)给出了量子点体系的偶极响应函数随外场频率的变化, 两图分别对应固定电子数和固定电子密度情形。为了显示多个偶极响应峰, 纵坐标采用了对数形式。图2(a)和图2(b)均显示, 随着量子点尺寸的增加(图中曲线由下往上), 偶极响应峰的个数将增加, 即等离子体元激发的个数将增加。造成此结果的根本原因是, 随体系长度的增加, 电子的能级将变得密集, 费米能附近一定能量范围内的能级数增多, 电子可选择从更多的能

级集体激发到费米圆外。另外, 图 2(b) 中元激发的个数比图 2(a) 增加更多。这是由于图 2(b) 固定电子密度情况下, 随着体系尺寸的增加, 电子数将增加。因此更多的电子将填充到费米能附近的高能级, 在相同的激发频率范围内, 会有更多的集体激发产生。这将造成元激发的个数随电子数的增加而增加, 如图 2(c) 中偶极响应峰所示。但元激发个数不是随电子数单调递增的, 一方面由于能级简并的影响, 增加的电子不一定就会填充到更高能级, 另一方面, 由于电子和空穴激发的等价性, 电子数增多, 对应空穴减少。所以, 在电子数达到半满之前, 增加比较多的电子, 元激发个数的增加才会比较明显。

小尺寸量子点体系存在分立的等离激元, 大尺寸量子点体系的等离激元随波矢是连续变化的, 那么等离激元的量子模式是如何转变为经典的连续模式呢? 为了回答这个问题, 在图 2(b) 结果的基础上, 图 3(a) 给出了等离激元的频谱分布, 横坐标 n_p 为等离激元的序数, $n_p = 1, 2, 3 \dots$ 表示从第一个元激发排到最后一个元激发。图 3(a) 结果显示, 在 $L_x, L_y < 7$ 的量子点体系中, 等离激元的频谱高度离散化, 不同元激发间的频率间隔较大。随量子点尺寸的增加, 元激发的个数在增加, 元激发间的频率间隔逐渐变小, 在 $L_x, L_y > 9$ 的量子点体系中, 等离激元的离散频谱将变成准连续频谱。

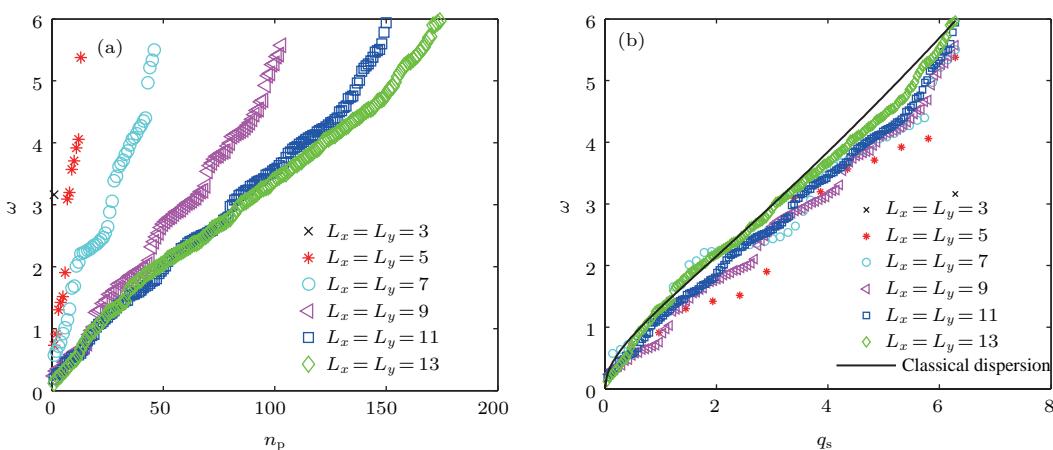


图3 (网刊彩色) (a) 等离激元的频谱分布; (b) 等离激元的频率随准波矢的变化

Fig. 3. (color online) (a) Frequency spectra of the plasmons; (b) the frequencies of the plasmons vary with the quasi-wave vector.

继续引入准波矢来阐明等离激元的量子模式如何转变为经典连续模式。根据等离激元的量子模式的分布情况, 准波矢的大小可定义为 $q_s = (n_p/N_p) k_F$, 其中, N_p 为元激发的总数目, k_F 为费米波矢的大小。图 3(b) 在图 3(a) 的基础上给出了等离激元频率随准波矢的变化情况, 并与经典的等离激元的色散曲线做比较。经典色散曲线由

$$\omega_q^2 = \left(\frac{2\pi n_e e^2}{m_e} \right) q + \frac{3}{4} q^2 v_F^2$$

给出^[23], 其中 $v_F = \hbar k_F/m_e$ 为费米速度的大小, m_e 为电子的质量, q 为波矢的大小。图 3(b) 结果显示, 量子点在尺寸较小时, 等离激元的频率离散的分布在经典色散曲线附近, 且色散曲线较经典色散曲线更低。量子点的尺寸逐步增大时, 等离激元离散色散曲线将逐步向经典色散曲线靠拢。当量子点

的尺寸 $L_x = L_y = 13$ 时, 等离激元色散曲线与经典色散曲线相当接近, 符合得很好, 此时等离激元的量子模式已基本转变为经典连续模式。随量子点尺寸增加, 等离激元的量子模式逐步向经典模式转变的过程符合玻尔的对应原理, 同时也体现了量子化的等离激元和经典等离激元在宏观尺度上的统一。

进一步研究了量子点的尺寸和电子数对等离激元的频率和激发强度的影响。量子点的尺寸和电子数对等离激元频率的影响结果已显示在图 2 中。图 2(a) 和图 2(b) 均显示, 等离激元的频率整体上会随着量子点尺寸的增加而红移, 尤其是偶极响应的最大峰所对应的激发频率蓝移最明显。产生此结果的原因是随着量子点尺寸的增长能级降低, 导致电子的集体振荡在更小的能量下被激发, 这与文

献[21, 22, 24, 25]的结果定性一致。同时图2(a)等离激元频率的红移速度会更快, 因为导致图2(a)结果的还有另一个主要原因, 那就是费米能的减小导致等离激元的频率减小[21, 22]。图2(c)显示, 等离激元的频率整体上随电子数目的增加在蓝移。等离激元频率蓝移的主要原因是电子数目的增加导致费米能的增大, 集体激发时电子需要更大的能量才能跑到费米圆外。

图4(a)给出了等离激元的激发强度随量子点尺寸的变化情况, 其中等离激元的激发强度由偶极响应的最大峰值给出, 其他响应峰值与最大峰值随量子点尺寸的变化情况一致, 不予重复给出。图4(a)结果显示, 固定电子数 $N_e = 2$, 随量子点体系尺寸的增加, 等离激元的激发强度近似线性增大。造成此结果的主要原因是集体激发在大尺度上的累积效应[9, 10]。图4(a)结果还显示, 固定电子密

度 $n_e = 1$ 时, 等离激元激发强度的增大比固定电子数时更快。这是由于固定电子密度情形, 随着体系尺寸的增加, 电子数将增加, 有更多的电子在大尺寸时加入集体振荡, 这将造成等离激元的激发强度随电子数的增加而增大, 如图4(b)所示。同时由于量子点体系能级简并和其中电子空穴双重激发的影响, 随着量子点中电子数的增加, 等离激元的激发强度不是单调递增的, 而是呈Z字形递增。

图5给出 $L_x = L_y = 5$ 的量子点在等离激元频率 $\omega = 1.586$ 处的近场分布。等离激元的近场分布由 $U(\mathbf{r}, \omega) = \sum_l \frac{Q_l(\omega)}{|\mathbf{r} - \mathbf{l}|}$ 的等势线给出, 图5(a)和图5(b)分别给出电势的实部和虚部。图5(a)结果显示, 量子点所在的二维平面上, 格点附近的电势远远大于其他位置的电势, 并比外加势强很多, 且其分布表现出明显的偶极特性。这一结果明显对应等离激元的偶极激发特征。图5(b)结果显示, 相比

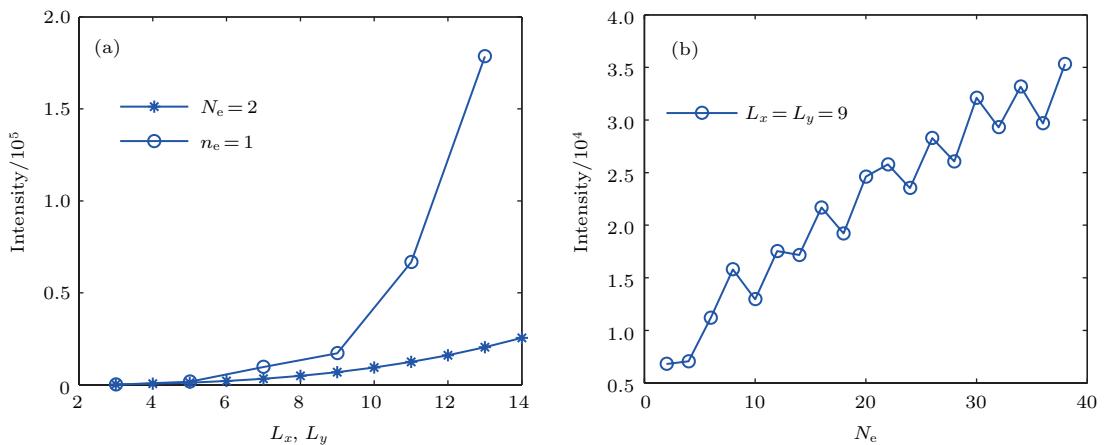


图4 等离激元的激发强度 (a) 随量子点尺寸的变化; (b) 随量子点中电子数的变化

Fig. 4. The excitation intensity of the plasmon: (a) Vary with the size of the quantum dots; (b) vary with the electron number of the quantum dot.

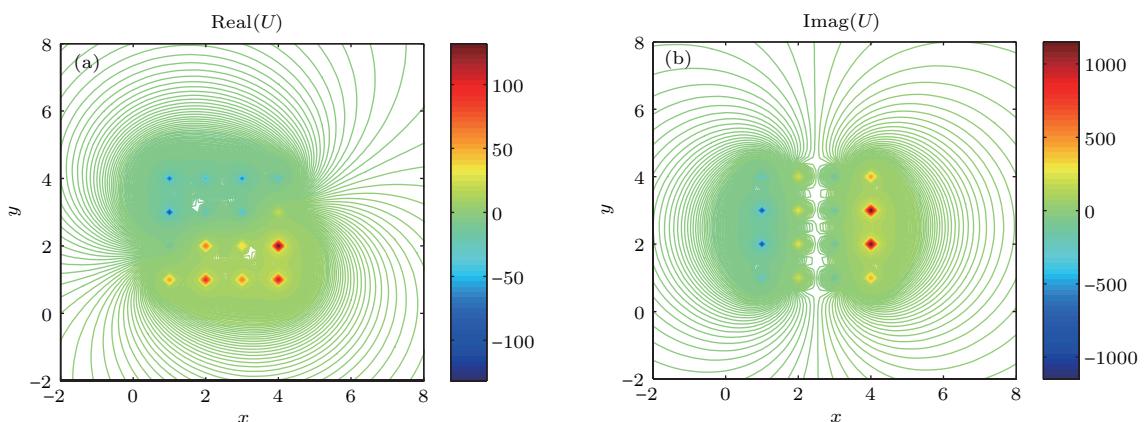


图5 (网刊彩色) 等离激元频率处的电势分布 (a) 实部; (b) 虚部

Fig. 5. (color online) Distribution of the electric potential at plasmon frequency: (a) Real part; (b) imaginary part.

电势的实部, 格点附近电势的虚部得到更大的增强, 电势虚部和量子点与外场的能量吸收有关, 说明利用能量吸收比利用电场增强更容易探测到格点的信息, 利用这个特征, 局域的等离激元可用于单原子和单分子的探测.

4 结 论

基于紧束缚近似和线性响应理论, 本文研究了量子点体系等离激元的量子化现象, 并分析了等离激元的量子模式随量子点尺寸的转变情况. 计算结果表明: 量子点体系在等离激元激发时会有明显的电荷共振, 并伴随着极大的能量吸收和近场增强. 在小量子点体系, 等离激元是量子化的, 等离子体元激发的个数会随着量子点尺寸和电子个数的增加而增加. 随着量子点尺寸的增加, 不同元激发间的频率间隔会越来越小, 等离激元会由分立的量子模式逐渐向连续模式转变, 等离激元的离散频谱曲线会渐渐演变为经典的连续色散曲线, 这个演变过程符合玻尔的对应原理, 体现了量子化的等离激元和经典等离激元在宏观程度上逐渐统一的思想, 对微观体系等离激元的研究具有理论指导意义. 此外, 本文研究了量子点的尺寸和电子数对等离激元的频率和激发强度的影响, 对于不同量子点体系, 随着量子点尺寸的增加, 等离激元的频率将红移, 等离激元的激发强度将增大. 对同一个量子点体系, 随电子数的增加, 等离激元的频率将蓝移, 等离激元的激发强度增大. 希望今后能在Ge或其他二元聚合物量子点体系得到表面等离激元的量子化现象, 并得出量子等离激元到经典等离激元的转变情况.

参考文献

- [1] Huang S Y, Chew W C, Liu Y G, Wu B I, Choi H W 2012 *J. Appl. Phys.* **111** 034308

- [2] Haran G 2010 *AIP Conf. Proc.* **1267** 59
- [3] Menegazzo N, Kegel L L, Kim Y C, Allen D L, Booksh K S 2012 *Rev. Sci. Instrum.* **83** 095113
- [4] Koller D M, Hohenau A, Ditlbacher H, Galler N, Reil F, Ausseneck F R, Leitner A, List E J W, Krenn J R 2008 *Nat. Photon.* **2** 684
- [5] Walters R J, van Loon R V A, Brunets I, Schmitz J, Polman A 2009 *Nat. Mater.* **9** 21
- [6] Liu N, Tang M L, Hentschel M, Giessen H, Alivisatos A P 2011 *Nat. Mater.* **10** 631
- [7] Lal S, Clare S E, Halas N J 2008 *Acc. Chem. Res.* **41** 1842
- [8] de Abajo F J 2012 *Nature* **483** 417
- [9] Yuan Z, Gao S 2008 *Phys. Rev. B* **78** 235413
- [10] Yan J, Yuan Z, Gao S 2007 *Phys. Rev. Lett.* **98** 216602
- [11] Cassidy A, Grigorenko I, Haas S 2008 *Phys. Rev. B* **77** 245404
- [12] Zuloaga J, Prodan E, Nordlander P 2009 *Nano Lett.* **9** 887
- [13] Li X, Xiao D, Zhang Z 2013 *New J. Phys.* **15** 23011
- [14] Moaied M, Yajadda M M A, Ostrikov K 2015 *Plasmonics* **10** 1615
- [15] Gu S J, Deng S S, Li Y Q, Lin H Q 2004 *Phys. Rev. Lett.* **93** 086402
- [16] Niehaus T A, Suhai S, Della Sala F, Lugli P, Elstner M, Seifert G, Frauenheim T 2001 *Phys. Rev. B* **63** 247
- [17] Xu Z, Chiesa S, Yang S, Su S Q, Sheehy D E, Moreno J 2011 *Phys. Rev. A* **84** 9325
- [18] Yu Y Q, Yu Y B, Xue H J, Wang Y X, Chen J 2016 *Physica B* **496** 26
- [19] Muniz R A, Haas S, Levi A F J, Grigorenko I 2009 *Phys. Rev. B* **80** 1132
- [20] Xin W, Wu R L, Xue H J, Yu Y B 2013 *Acta Phys. Sin.* **62** 177301 (in Chinese) [辛旺, 吴仍来, 薛红杰, 余亚斌 2013 物理学报 **62** 177301]
- [21] Wu R, Xue H, Yu Y, Hu H, Liu Q 2014 *Europhys. Lett.* **108** 27001
- [22] Wu R, Xue H, Yu Y, Hu H 2014 *Phys. Lett. A* **378** 2295
- [23] Li Z Z 2002 *Solid State Theory* (2nd Ed.) (Beijing: Higher Education Press) p108 (in Chinese) [李正中 2002 固体理论(第二版)(北京: 高等教育出版社) 第108页]
- [24] Liu D D, Zhang H 2011 *Chin. Phys. B* **20** 097105
- [25] Liu D D, Zhang H, Cheng X L 2012 *J. Appl. Phys.* **112** 053707

Quantization of plasmon in two-dimensional square quantum dot system*

Wu Reng-Lai¹⁾ Xiao Shi-Fa¹⁾ Xue Hong-Jie²⁾ Quan Jun^{1)†}

1) (College of Physics Science and Technology, Lingnan Normal University, Zhanjiang 524048, China)

2) (School of Electronic Engineering, Xi'an Aviation University, Xi'an 710077, China)

(Received 19 May 2017; revised manuscript received 19 August 2017)

Abstract

Plasmon in quantum dot system is one of the most notable research topics in the field of optoelectronics. With the development of nanotechnology, plasmon in nano-structure has received considerable attention due to its potential applications in future natural science areas. To better understand the quantum effect and the properties of plasmon, in this paper we use the linear response theory and the tight-binding approximation to investigate the collective response of charge in a two-dimensional square quantum dot system. The results show that when the frequency of the external field equals the frequency of the plasmon, there are strong charge collective oscillations in the quantum dot system, accompanied by great energy absorption and near-field enhancement. Owing to the quantization of plasmon, the collective charge oscillations in a two-dimensional square quantum dot system are found at different frequencies. The number of quantum modes of plasmon increases with the size and electron number of square quantum dots increasing, this behaviour of quantum mode of plasmon is similar to the one of phonon. The reasons for this behaviour are as follows. First, with the increase of quantum dot size, there are more energy levels around the fermi energy, and the electrons can jump from more energy levels to the outside of fermi circle, so there are more collective excitation frequencies (i.e., more quantum modes of plasmon) in a larger size system. Second, with the increase of electron number in quantum dots, there are more energy levels occupied by electrons, so there are more quantum modes of plasmon too. Furthermore, the size dependence of plasmon shows that with the increase of quantum dot size, the frequency interval between two neighbouring modes of plasmon is smaller, and the discrete modes of plasmon will gradually display quasi-continuous characteristic and transform gradually into the classical continuous modes of plasmon, and the frequency spectrum of plasmon turns into the classical dispersion relation. Such a characteristic is in accord with Bohr's correspondence principle, implying that the quantum plasmon and classical plasmon are gradually unified in a macroscopic size. The dependence of plasmon on the size and electron number of quantum dots also show that with the increase of the quantum dot size, the frequencies of the plasmon is red-shifted and the excitation intensity of the plasmon increases; with the increase of the electron number in quantum dot, the frequency of the plasmon is blue-shifted and the excitation intensity of the plasmon increases.

Keywords: two-dimensional square quantum dot, plasmon, quantization

PACS: 73.20.Mf, 73.21.-b, 78.67.-n

DOI: 10.7498/aps.66.227301

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 11647156) and Natural Science Foundation of Guangdong Province, China (Grant No. 2014A030307035).

† Corresponding author. E-mail: quanj@lingnan.edu.cn