

О лазерной генерации двумерных материалов с накачкой на квазизапертых модах

М. Ю. Губин⁺*, А. В. Шестериков⁺*, В. С. Волков*, А. В. Прохоров⁺⁺¹⁾

⁺Кафедра физики и прикладной математики,
Владимирский государственный университет им. А. Г. и Н. Г. Столетовых (ВлГУ), 600000 Владимир, Россия

*Центр фотоники и двумерных материалов, Московский физико-технический институт (МФТИ),
141701 Долгопрудный, Россия

Поступила в редакцию 23 декабря 2022 г.

После переработки 5 января 2023 г.

Принята к публикации 7 января 2023 г.

Предложена модель для описания лазерной генерации двумерных полупроводниковых пленок с ближнеполевой накачкой посредством квазизапертых мод, возбуждаемых в диэлектрических метаповерхностях. Спроектирован дизайн метаструктуры, состоящей из покрытой MoTe_2 пленкой Si метаповерхности, в которой совмещены узкоспектральный резонанс квазизапертой моды и широкий экситонный резонанс двумерного материала. Определены условия порога генерации в MoTe_2 пленке с накачкой квазизапертыми модами и показана возможность поляризационного управления излучением предложенной метаструктуры.

DOI: 10.31857/S1234567823040055, EDN: pionhu

Проектирование наноизлучающих устройств с накачкой сильным ближним полем посредством плазмонных и диэлектрических нанорезонаторов представляет одно из значимых и быстроразвивающихся направлений современной нанофотоники. В самых первых работах [1, 2] использовалось совмещение экситонного резонанса квантоворазмерного хромофора и ближнего поля плазмонной наночастицы. Однако большие потери в металлических нанорезонаторах существенно увеличивали порог лазерной генерации. Использование нелинейных ближнеполевых, а также коллективных эффектов [3] только частично решает вопрос управления генерацией в таких системах. Новые возможности связаны с использованием подходов диэлектрической нанофотоники [4–6] для проектирования низкопороговых эффективно управляемых микро- и нанолазеров. Так, в работе [7] положительная обратная связь была достигнута совмещением экситонного резонанса и высшего порядка мультипольности резонансов Ми в одиночных перовскитных наночастицах при невысоких значениях порога генерации.

Вместе с тем, чтобы повысить результирующую мощность генерации, можно осуществлять сборку таких генерирующих наночастиц в метаповерхность с синхронизацией их ближнеполевых откликов посредством коллективных субдифракционных эффек-

тов. Синхронизация может осуществляться посредством возбуждения т.н. фотонных связанных состояний в континууме [8, 9], приводящих к генерации (квази)запертых мод (КЗМ) [10, 11] и сильной концентрации ближнего поля вблизи и внутри наночастиц. Однако, возбуждение квазизапертой моды в решетке даже слабо-диссипативных частиц способно инициировать коллективное усиление потерь [12] за счет наведения сильных полей внутри каждой наночастицы. Поэтому метаповерхность может использоваться для ближнеполевой накачки, тогда как активной средой могут выступать нанесенные на нее фотолуминесцирующие двумерные полупроводниковые материалы толщиной в один или несколько атомарных слоев [13], в том числе – на основе обладающих рекордной оптической анизотропией [14] и яркими экситонными резонансами [15] дихалькогенидов переходных металлов.

В качестве ближнеполевой накачки будем использовать метаповерхность, составленную из Si дисков радиусом R_2 и высотой H , имеющих смещенное на величину Δ_y в направлении оси y круглое отверстие с радиусом R_1 , см. рис. 1а. При облучении такой метаповерхности плоско-поляризованной волной пробного поля с поляризацией $E_x(k_z)$ в каждом из дисков за счет бианизотропии может возбуждаться компонента дипольного магнитного момента m_z [12], нормальная плоскости основания. В случае, когда с учетом эффективной диэлектрической проницаемости

¹⁾e-mail: alprokhorov33@gmail.com

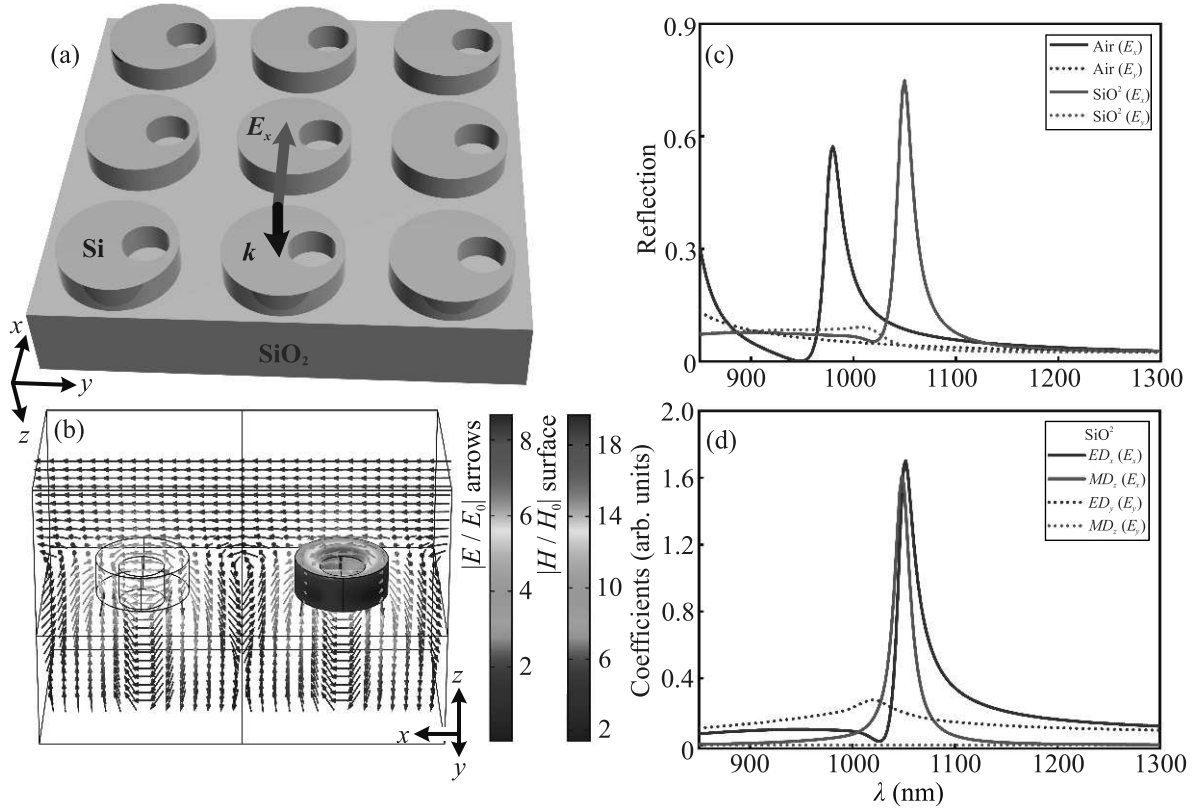


Рис. 1. (Цветной онлайн) (а) – Модель метаповерхности Si дисков с отверстиями. (б) – Визуализация рассчитанного распределения магнитного поля (цветом, правый диск) на поверхности и электрического поля (стрелки) вблизи пары Si дисков из метаповерхности в условиях КЗМ. (с) – Сравнение спектров отражения метаповерхности при ее расположении в вакууме и на кварцевой подложке, а также при ортогональных поляризациях пробной электромагнитной волны. (d) – Результаты мультипольного анализа для вкладов различных компонент электрического (ED_x для p_x и ED_y для p_y) и магнитного (MD_z для m_z) диполей в общее сечение рассеяния одиночного диска из метаповерхности на SiO₂ подложке в режиме возбуждения КЗМ. Параметры системы: $R_2 = 164$ нм, $H = 110$ нм, $R_1 = 80$ нм, $\Delta_y = 70$ нм, $T = 702$ нм

метаповерхности, ее период T будет удовлетворять конструктивной интерференции ближнеполевых откликов отдельных дисков, в ней может реализоваться режим КЗМ [12], рис. 1б.

На основе стратегии поиска КЗМ [16] получим период $T = 702$ нм для размещенной в вакууме метаповерхности, состоящей из Si дисков с параметрами: $R_2 = 164$ нм, $H = 110$ нм, $R_1 = 80$ нм, $\Delta_y = 70$ нм. В этом случае, возбуждение КЗМ будет происходить на длине волны $\lambda_{QTM} = 980$ нм, см. рис. 1с. При размещении той же метаповерхности на SiO₂ подложке, резонанс КЗМ смещается на длину волны $\lambda_{QTM} = 1050$ нм и проявляется в виде пика отражения сигнального поля с полной шириной на полувысоте $FWHM = 19.7$ нм, см. рис. 1с. Добротность такого резонанса составит $Q = \lambda_{QTM}/FWHM = 54$. Значительное увеличение коэффициента отражения метаповерхности на длине волны КЗМ обусловлено

резонансным усилением излучающей компоненты p_x электрического диполя каждого диска, см. результаты мультипольного анализа на рис. 1d [17, 18]. В свою очередь, такое усиление является следствием бианизотропной связи между компонентами p_x и m_z , последняя из которых и ответственна за режим формирования КЗМ [11, 12]. При смене поляризации падающей волны на $E_y(k_z)$ бианизотропная компонента m_z в дисках не возбуждается (рис. 1d), так как нарушается условие расположения дефекта (отверстия) по отношению к поляризации возбуждающего поля [16]. В итоге связанная с возбуждением КЗМ особенность коэффициента отражения метаповерхности исчезает, см. рис. 1с. Таким образом, появляется возможность поляризационного управления формированием КЗМ в метаповерхности и интенсивностью ближнеполевого отклика каждого из ее строительных блоков. Кроме того, в режиме КЗМ элек-

трическая компонента ближнего поля над поверхностью дисков ориентирована преимущественно в плоскости метаповерхности (см. рис. 1b) за счет возбуждения p_x , что является основой для эффективного управления экситонными резонансами при размещении двумерной пленки поверх метаповерхности.

Далее полагаем, что в качестве активной среды метаструктуры выступают снятые, например, методом эксфолиации [19], с MoTe_2 кристалла чешуйки (флейки) толщиной в один атомарный слой и размерами $1000 \times 1000 \times 0.7$ нм. В таких условиях MoTe_2 можно считать прямозонным полупроводником [20], длина волны λ_0 фотолюминесценции которого определяется шириной E_g запрещенной зоны и зависит от температуры. Например, при температуре 4.5 К получим $E_g = 1.18$ эВ, $\lambda_0 = 1056$ нм [20], а комплексный показатель преломления такого материала составит $\bar{n}(\lambda_0) = n(\lambda_0) + i\alpha(\lambda_0) = 4.4752 + i0.39967$ [21].

В качестве накачки может быть использован He-Ne непрерывный лазер на длине волны $\lambda_p = 633$ нм [13], нормально освещающий метаструктуру в виде монослоя MoTe_2 , лежащего поверх поддерживающей КЗМ метаповерхности, см. рис. 2а. При настройке центральной длины волны λ_0 фотолюминесценции MoTe_2 на длину волны λ_{QTM} квазизапертой моды можно ожидать значительного усиления фотолюминесценции с возможностью генерации когерентного электромагнитного излучения системой в направлении, перпендикулярном плоскости метаструктуры. При этом изначальная оптимизация метаповерхности с рис. 1а проводилась таким образом, чтобы при ее покрытии монослойной пленкой MoTe_2 длина волны КЗМ смещалась бы точно на $\lambda_{QTM} = 1056$ нм.

Переход к режиму генерации лазерного излучения может быть описан с использованием кинетических уравнений для концентрации носителей заряда N и фотонов S сигнального поля [7, 22, 23] в активной среде MoTe_2 метаструктуры в виде:

$$\frac{dN}{dt} = \frac{\alpha P}{\hbar\omega V} - R_{nr}(N) - R_{sp}(N) - v_g g(N)S, \quad (1a)$$

$$\frac{dS}{dt} = -\frac{S}{\tau_p} + \Gamma v_g g(N)S + \Gamma\beta R_{sp}(N), \quad (1b)$$

где $\hbar\omega$ – энергия внешней оптической накачки, α – мнимая часть показателя преломления для MoTe_2 на длине волны 1056 нм, V – объем структуры, $\tau_p = Q/\omega$ – время жизни излучающей моды, $\omega = \frac{2\pi c}{\lambda}$ – частота излучающей моды, Γ – коэффициент удержания лазерной моды, β – коэффициент спонтанного излучения, определяемый фактором Парселла,

I – интенсивность накачки. В (1) приведены следующие параметры: $R_{nr} = N/\tau_{nr} + CN^3$ и $R_{sp} = N/\tau_{sp}$ – скорость безызлучательной рекомбинации и общая скорость спонтанного излучения, соответственно; $g(N) = a(N - N_{tr})$ – коэффициент индуцированного усиления. Здесь τ_{nr} , τ_{sp} соответствуют времени жизни безызлучательной и спонтанной рекомбинации, C – коэффициент Оже-рекомбинации, a – сечение индуцированного усиления, N_{tr} – концентрация электронно-дырочных пар для режима просветления среды, $v_g = c/n_g$ – групповая скорость генерируемого излучения, c – скорость света в вакууме, полагаем $n_g = n(\lambda_0)$. Далее, следуя [24], для монослоя MoTe_2 выбираем $\tau_{sp} = 3$ пс (сравните с 4 пс в [13]), $\tau_{nr} = 23$ пс, а также $C = 10^{-40} \text{ м}^6 \text{ с}^{-1}$ [7], $\beta = 0.1$ и $\Gamma = 0.04038$.

Стационарное решение (1) для концентрации фотонов S_s и мощности накачки P зависит от стационарной концентрации носителей N_s и принимает вид [22]:

$$S_s(N_s) = \frac{\beta\Gamma\tau_p N_s}{\tau_{sp}(1 + \Gamma v_g a \tau_p (N_{tr} - N_s))}, \quad (2a)$$

$$P(N_s) = \frac{\hbar\omega V}{\alpha} \left(CN_s^3 + \frac{N_s}{\tau_{nr}} + (1 - \beta) \frac{N_s}{\tau_{sp}} + \frac{S_s(N_s)}{\Gamma\tau_p} \right). \quad (2b)$$

На рисунке 2b представлены параметрические кривые усиления для S_s от интенсивности накачки $I = P(N_s)/A_{str}$, где A_{str} – площадь флейка. В частности, при включении и последующем увеличении интенсивности поля накачки I , порог лазерной генерации определяется положением перегиба кривой усиления $S_s(I)$ сигнального поля в представлении двойного логарифмического масштаба, что соответствует условию [13, 25]:

$$\frac{d^2 \log_{10} S_s}{(d \log_{10} I)^2} = 0. \quad (3)$$

Комплексная диэлектрическая проницаемость материала MoTe_2 в условиях с накачкой на длине волны λ_p может быть представлена в виде [7]:

$$\varepsilon_{\text{eff}}(\omega) = \varepsilon_r(\omega) + \frac{f_0 \omega_0^2}{\omega_0^2 - \omega^2 - i\gamma\omega}, \quad (4)$$

где $\varepsilon_r(\omega) = \text{Re}[(\bar{n}(\omega))^2]$ соответствует дисперсии MoTe_2 без накачки, т.е. когда $f_0 = 0$; f_0 соответствует амплитуде усиления на длине волны λ_0 с лоренцевским форм-фактором; $\omega_0 = 2\pi/\lambda_0$, $\gamma = 1/\tau_p$. При расчетах использовалась изотропная дисперсия для MoTe_2 [21], т.е. $\varepsilon_r(\omega) \approx \varepsilon_{\parallel}(\omega)$, как в [26], поскольку электрическая составляющая КЗМ

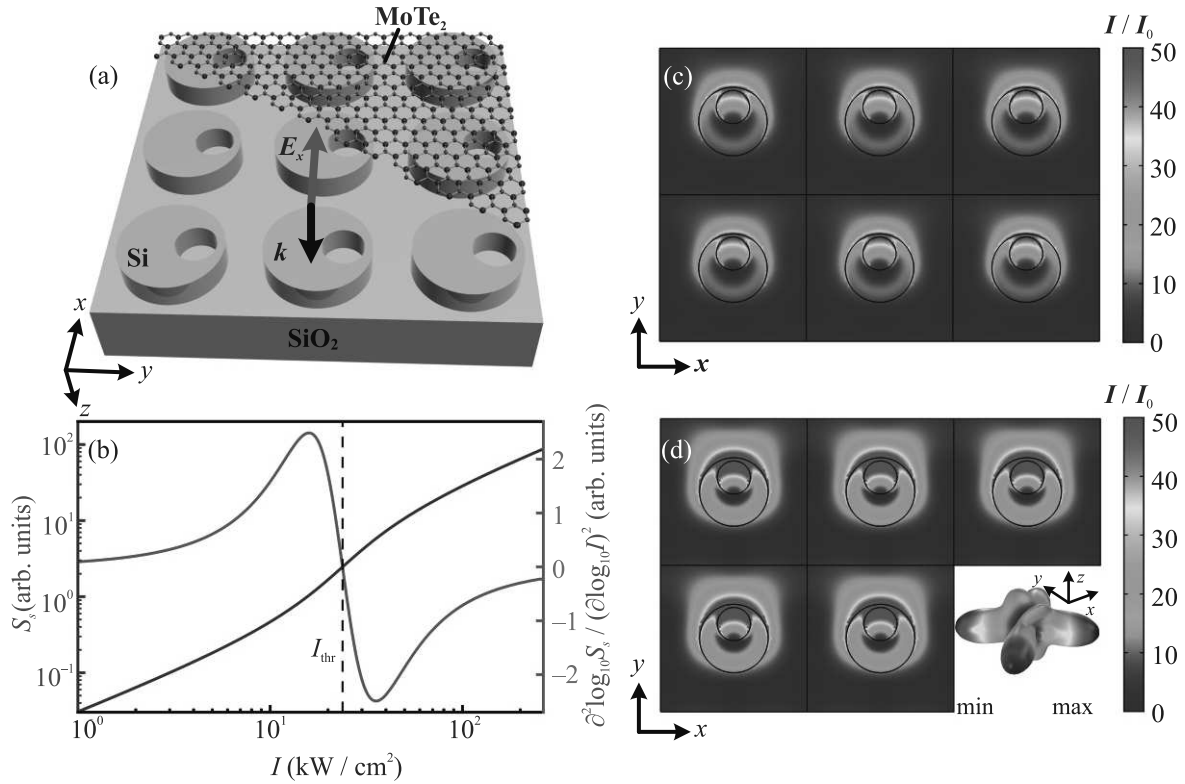


Рис. 2. (Цветной онлайн) (а) – Модель метаструктуры в виде тонкой пленки MoTe_2 , нанесенной поверх метаповерхности из Si дисков с отверстиями. (б) – Зависимости стационарной концентрации фотонов S_s и ее производной $\frac{d^2 \log_{10} S_s}{(d \log_{10} I)^2}$ от интенсивности ближнеполевой накачки I . Вертикальная линия соответствует порогу генерации I_{thr} . (с) и (д) – Визуализация распределения интенсивности электрического поля в пленке MoTe_2 над Si метаповерхностью в режиме генерации КЗМ в ней: (с) – в отсутствие поля накачки и (д) – при наличии с надпороговой интенсивностью $\bar{I} = 2.2 \text{ кВт/см}^2$. Ближнее поле нормировано на интенсивность падающей волны. Черными линиями на MoTe_2 пленку спроецированы контуры дисков метаповерхности, находящейся под ней. На вставке к (д): диаграмма направленности рассеяния для одного диска из состава метаповерхности. Параметры Si метаповерхности соответствуют рис. 1

ориентирована преимущественно вдоль поверхности пленки, см. рис. 1б.

В процессе численного моделирования варьировалась мнимая часть эффективной диэлектрической проницаемости $\epsilon_{\text{eff}}(\omega)$ MoTe_2 вплоть до значений, при которых происходила полная компенсация потерь, т.е. коэффициент отражения пробного поля от метаструктуры становился равным 1. В этом случае $f_0 = \text{Im}[(n(\omega_0) + ik_g)^2] \gamma / \omega_0$ и, используя выражение $k_g = -\frac{g\lambda}{4\pi}$ [27, 28] для мнимой части проницаемости, может быть получено пороговое значение коэффициента усиления g_{thr} всей метаструктуры в целом. Для рассматриваемого случая с рис. 2а пороговые условия соответствуют $\epsilon_{\text{eff}} = 2.3207 - 0.5012i$ и при выборе $N_{tr} = 1.61 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-3}$ и $a = 7.08 \cdot 10^{-18} \text{ м}^2$ получим $k_g = -0.8$, что соответствует $g_{\text{thr}} = 95194 \text{ см}^{-1}$ и пороговой интенсивности ближнеполевой накачки $I_{\text{thr}} = 23.78 \text{ кВт/см}^2$ (с пороговой мощностью

$P_{\text{thr}} = 0.238 \text{ мВт}$) и реализуется при концентрации носителей $N_{\text{thr}} = 1.51 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$.

Численное моделирование ближнеполевого отклика рассматриваемой метаструктуры осуществлялось посредством COMSOL Multiphysics. Для моделирования тонкой пленки MoTe_2 с толщиной h за пределами разрешающей способности программного алгоритма использовался пересчет из реальной $\epsilon(\omega)$ в эффективную $\epsilon_F(\omega)$ диэлектрическую проницаемость для аналогичного по своим свойствам, но более толстого h_F слоя в виде:

$$\epsilon_F(\omega) = 1 + (\epsilon(\omega) - 1) \frac{h}{h_F}, \quad (5)$$

где $h = 0.7 \text{ нм}$ – реальная толщина слоя MoTe_2 , $h_F = 10 \text{ нм}$ – толщина эффективного слоя MoTe_2 , используемая в численном моделировании.

В результате, на рис. 2с представлено электрическое поле внутри MoTe_2 пленки над метаповерхно-

стью в режиме возбуждения КЗМ на длине волны $\lambda_{QTM} = 1056$ нм, но в отсутствии дополнительно поля накачки. Включение поля накачки, увеличивающего интенсивность ближнеполевого отклика дисков до значения $I = 200$ кВт/см², приводит к надпороговым условиям с эффективной диэлектрической проницаемостью $\epsilon_{\text{eff}} = 2.3207 - 0.6538i$ и соответствующим ей коэффициентом усиления $k_g = -1.0435$ пленки. Поскольку фактической накачкой MoTe₂ пленки выступает ближнее поле в “горячих точках” на поверхности Si дисков (см. рис. 2d), необходимая для реализации режима интенсивность \bar{I} поля оптической накачки из дальней зоны снижается приблизительно в 90 раз. В рассматриваемом случае его интенсивность составит $\bar{I} = 2.2$ кВт/см², см. рис. 2d. Фактически это соответствует уменьшению порога генерации до значения $\bar{I}_{\text{thr}} = 264$ Вт/см².

Представленная на вставке к рис. 2d диаграмма направленности показывает, что большая часть энергии падающей волны концентрируется и рассеивается в плоскости метаповерхности. Этот некогерентный процесс связан с возбуждением неизлучающего магнитного диполя m_z в режиме КЗМ. При этом, только часть запасенной метаповерхностью энергии переизлучается за счет обусловленного бианизотропией возбуждения p_x компоненты электрического диполя. Однако этого оказывается достаточно для превышения пороговых условий и формирования когерентного сигнала от всей плоскости метаповерхности с нанесенной активной средой. При этом простое управление режимом возбуждения КЗМ и генерации в системе может быть осуществлено посредством переключения поляризации пробного поля. Значительно большей энергоэффективности следует ожидать при реализации КЗМ на бианизотропии электрического типа с возбуждением p_z компоненты в каждом диске [16]. Активной средой для такой системы могут служить полупроводниковые квантовые точки, генерирующие когерентное излучение в плоскости метаповерхности.

В заключение следует отметить, что в представленной системе с накачкой на КЗМ может быть достигнута существенно большая добротность [9, 16] и можно ожидать снижения порога генерации вплоть до единиц Вт/см². Кроме того, использование открытых резонаторных систем на квазизапертых модах в квазибесконечных решетках позволяет существенно расширить размеры активной области и создавать масштабируемые генерирующие лазерное излучение устройства и метапокрытия. Такие покрытия могут быть размещены, в том числе, на гибких, а также проводящих подложках; созданы посредством лазер-

ной печати [29] либо на основе жидких метаматериалов [30] и управляемы внешним электрическим полем.

Авторы выражают глубокую признательность профессору А. Б. Евлюхину за полезные обсуждения.

Исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда # 22-22-01020, <https://rscf.ru/project/22-22-01020>.

1. M. I. Stockman, *J. Opt.* **12**, 024004 (2010).
2. M. A. Noginov, G. Zhu, A. M. Belgrave, R. Bakker, V. M. Shalae, E. E. Narimanov, S. Stout, E. Herz, T. Suteewong, and U. Wiesner, *Nature* **460**, 1110 (2009).
3. A. V. Shesterikov, M. Yu. Gubin, S. N. Karpov, and A. V. Prokhorov, *JETP Lett.* **107**, 435 (2018).
4. A. B. Evlyukhin, S. M. Novikov, U. Zywiets, R. L. Eriksen, C. Reinhardt, S. I. Bozhevolnyi, and B. N. Chichkov, *Nano Lett.* **12**, 3749 (2012).
5. P. Tonkaev and Yu. Kivshar, *JETP Lett.* **112**, 615 (2020).
6. A. I. Kuznetsov, A. E. Miroshnichenko, Y. H. Fu, J. Zhang, and B. Luk'yanchuk, *Sci. Rep.* **2**, 492 (2012).
7. E. Tiguntseva, K. Koshelev, A. Furasova, P. Tonkaev, V. Mikhailovskii, E. V. Ushakova, D. G. Baranov, T. Shegai, A. A. Zakhidov, Y. Kivshar, and S. V. Makarov, *ACS Nano* **14**, 8149 (2020).
8. N. M. Shubin, V. V. Kapaev, and A. A. Gorbatsevich, *JETP Lett.* **116**, 205 (2022).
9. A. M. Chernyak, M. G. Barsukova, A. S. Shorokhov, A. I. Musorin, and A. A. Fedyanin, *JETP Lett.* **111**, 46 (2020).
10. C. W. Hsu, B. Zhen, A. D. Stone, J. D. Joannopoulos, and M. Soljačić, *Nat. Rev. Mater.* **1**, 16048 (2016).
11. A. B. Evlyukhin, V. R. Tuz, V. S. Volkov, and B. N. Chichkov, *Phys. Rev. B* **101**, 205415 (2020).
12. A. V. Prokhorov, A. V. Shesterikov, M. Yu. Gubin, V. S. Volkov, and A. B. Evlyukhin, *Phys. Rev. B* **106**, 035412 (2022).
13. Y. Li, J. Zhang, D. Huang, H. Sun, F. Fan, J. Feng, Z. Wang, and C. Z. Ning, *Nature Nanotechnol.* **12**, 987 (2017).
14. G. A. Ermolaev, D. V. Grudin, Y. V. Stebunov et al. (Collaboration), *Nat. Commun.* **12**, 854 (2021).
15. M. M. Glazov and E. L. Ivchenko, *JETP Lett.* **113**, 10 (2021).
16. A. B. Evlyukhin, M. A. Poleva, A. V. Prokhorov, K. V. Baryshnikova, A. E. Miroshnichenko, and B. N. Chichkov, *Laser Photonics Rev.* **15**, 2100206 (2021).
17. A. B. Evlyukhin, T. Fischer, C. Reinhardt, and B. N. Chichkov, *Phys. Rev. B* **94**, 205434 (2016).

18. A. B. Evlyukhin and B. N. Chichkov, *Phys. Rev. B* **100**, 125415 (2019).
19. D. Ghazaryan, M. T. Greenaway, Z. Wang et al. (Collaboration), *Nat. Electron.* **1**, 344 (2018).
20. I. G. Lezama, A. Arora, A. Ubaldini, C. Barreateau, E. Giannini, M. Potemski, and A. F. Morpurgo, *Nano Lett.* **15**, 2336 (2015).
21. A. R. Beal and H. P. Hughes, *J. Phys. C: Solid State Phys.* **12**, 881 (1979).
22. A. Baranov and E. Tournie, *Semiconductor lasers. Fundamentals and applications; Woodhead Publishing Series in Electronic and Optical Materials #33*, Woodhead Publishing Limited, Oxford, Cambridge, Philadelphia, New Delhi (2013).
23. Q. Gu and Y. Fainman, *Semiconductor Nanolasers*, Cambridge University Press, Cambridge (2017).
24. L. Li, M.-F. Lin, X. Zhang, A. Britz, A. Krishnamoorthy, R. Ma, R. K. Kalia, A. Nakano, P. Vashishta, P. Ajayan, M. C. Hoffmann, D. M. Fritz, U. Bergmann, and O. V. Prezhdo, *Nano Lett.* **19**, 6078 (2019).
25. C. Z. Ning, *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.* **19**, 1503604 (2013).
26. B. Munkhbat, P. Wrobel, T. J. Antosiewicz, and T. Shegai, arXiv:2203.13793 (2022).
27. Z.-Y. Li and Y. Xia, *Nano Lett.* **10**, 243 (2010).
28. Y. Zhang, J. Li, Y. Wu, L. Liu, X. Ming, T. Jia, and H. Zhang, *Plasmonics* **12**, 1983 (2017).
29. U. Zywietz, A. B. Evlyukhin, C. Reinhardt, and B. N. Chichkov, *Nat. Commun.* **5**, 3402 (2014).
30. A. A. Жаров, H. A. Жарова, *ЖЭТФ* **162**, 844 (2022).