Письма в ЖЭТФ, том 117, вып. 4, с. 273 – 278 © 2023 г. 25 февраля

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 эффектов. 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 фотолюминесцирующие 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. 1a. 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

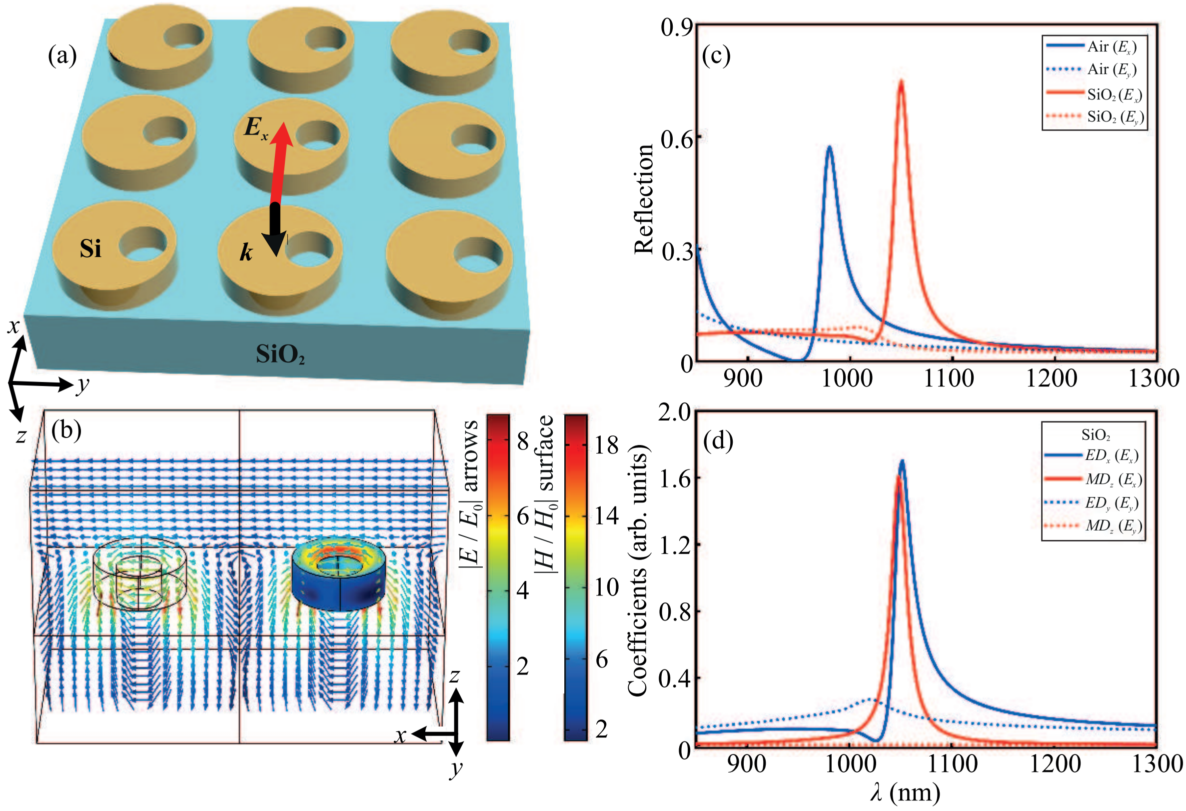

Рис. 1. (Цветной онлайн) (a) – Модель метаповерхности Si дисков с отверстиями. (b) – Визуализация рассчитанного распределения магнитного поля (цветом, правый диск) на поверхности и электрического поля (стрелки) вблизи пары Si дисков из метаповерхности в условиях КЗМ. (c) – Сравнение спектров отражения 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 SiO_2 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. 1b.

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. 1c. При размещении той же метаповерхности на SiO_2 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. 1c. Добротность такого резонанса составит $Q = \lambda_{QTM}/\mathrm{FWHM} = 54$. 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. 1c. Таким образом, появляется возможность поляризационного управления формированием КЗМ в метаповерхности и интенсивностью ближнеполевого отклика каждого из ее строительных блоков. Кроме того, в режиме КЗМ электрическая 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 $\mathrm{MoTe_2}$ кристалла чешуйки (флейки) толщиной в один атомарный слой и размерами $1000 \times 1000 \times 0.7$ нм. В таких условиях $\mathrm{MoTe_2}$ 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 $\overline{n}(\lambda_0) = n(\lambda_0) + i\alpha(\lambda_0) = 4.4752 + i0.39967$ [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 $\mathrm{MoTe_2}$, лежащего поверх поддерживающей КЗМ метаповерхности, см. рис. 2а. При настройке центральной длины волны λ_0 фотолюминесценции $\mathrm{MoTe_2}$ 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 $\mathrm{MoTe_2}$ 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 $\mathrm{MoTe_2}$ метаструктуры в виде:

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

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

где $\hbar\omega$ – энергия внешней оптической накачки, α – мнимая часть показателя преломления для $\mathrm{MoTe_2}$ 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 $\mathrm{MoTe_2}$ 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]:

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

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

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]:

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

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

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

где $\varepsilon_r(\omega) = \mathrm{Re}\left[(\overline{n}(\omega))^2\right]$ соответствует дисперсии $\mathrm{MoTe_2}$ 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 $\mathrm{MoTe_2}$ [21], т.е. $\varepsilon_r(\omega) \approx \varepsilon_{\parallel}(\omega)$, как в [26], поскольку электрическая составляющая КЗМ

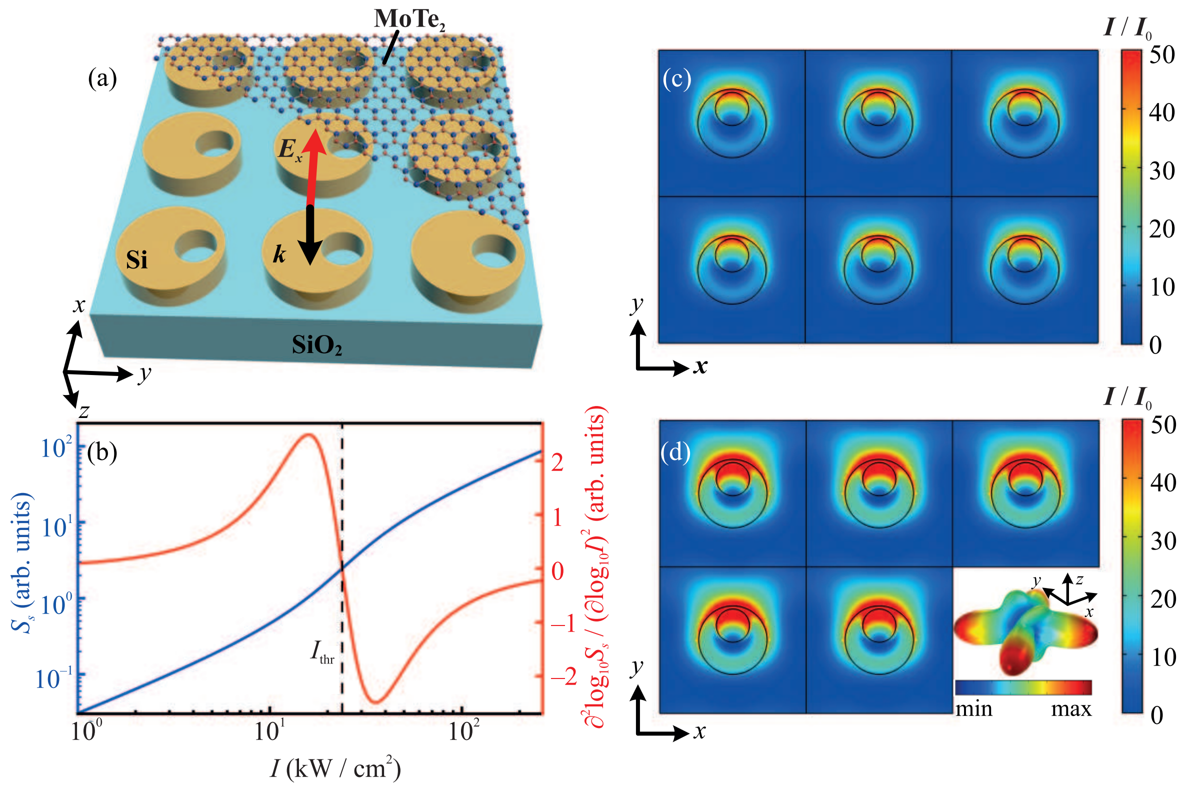

Рис. 2. (Цветной онлайн) (a) – Модель метаструктуры в виде тонкой пленки $MoTe_2$, нанесенной поверх метаповерхности из Si дисков с отверстиями. (b) – Зависимости стационарной концентрации фотонов S_s и ее производной $\frac{d^2 \log_{10} S_s}{(d \log_{10} I)^2}$ от интенсивности ближнеполевой накачки I. Вертикальная линия соответствует порогу генерации I_{thr}. (c) и (d) – Визуализация распределения интенсивности электрического поля в пленке $MoTe_2$ над Si метаповерхностью в режиме генерации КЗМ в ней: (c) – в отсутствии поля накачки и (d) – при его наличии с надпороговой интенсивностью $\overline{I} = 2.2$ 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 (d): диаграмма направленности рассеяния для одного диска из состава метаповерхности. Параметры Si метаповерхности соответствуют рис. 1

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

В процессе численного моделирования варьировалась мнимая часть эффективной диэлектрической проницаемости $\varepsilon_{\text{eff}}(\omega)$ $MoTe_2$ вплоть до значений, при которых происходила полная компенсация потерь, т.е. коэффициент отражения пробного поля от метаструктуры становился равным 1. В этом случае $f_0 = \text{Im}\big[(n(\omega_0) + ik_g)^2\big]\gamma/\omega_0$ 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. 2a пороговые условия соответствуют $\varepsilon_{\text{eff}} = 2.3207 - 0.5012i$ и при выборе $N_{tr} = 1.61 \cdot 10^{17}$ см$^{-3}$ и $a = 7.08 \cdot 10^{-18}$ м^2 получим $k_g = -0.8$, что соответствует $g_{\text{thr}} = 95194$ см$^{-1}$ и пороговой интенсивности ближнеполевой накачки $I_{\text{thr}} = 23.78$ кВт/см^2 (с пороговой мощностью $P_{\text{thr}} = 0.238$ мВт) и реализуется при концентрации носителей $N_{\text{thr}} = 1.51 \cdot 10^{18}$ 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 $\varepsilon(\omega)$ в эффективную $\varepsilon_F(\omega)$ диэлектрическую проницаемость для аналогичного по своим свойствам, но более толстого h_F слоя в виде:

$$\varepsilon_F(\omega) = 1 + \big(\varepsilon(\omega) - 1\big)\frac{h}{h_F}, \quad (5)$$

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

В результате, на рис. 2c представлено электрическое поле внутри $MoTe_2$ пленки над метаповерхностью в режиме возбуждения КЗМ на длине волны $\lambda_{QTM} = 1056$ нм, но в отсутствии дополнительного поля накачки. Включение поля накачки, увеличивающего интенсивность ближнеполевого отклика дисков до значения $I = 200$ кВт/см^2, приводит к надпороговым условиям с эффективной диэлектрической проницаемостью $\varepsilon_{\text{eff}} = 2.3207{-}0.6538i$ и соответствующим ей коэффициентом усиления $k_g = -1.0435$ пленки. Поскольку фактической накачкой $MoTe_2$ пленки выступает ближнее поле в "горячих точках" на поверхности Si дисков (см. рис. 2d), необходимая для реализации режима интенсивность $\overline{I}$ поля оптической накачки из дальней зоны снижается приблизительно в 90 раз. В рассматриваемом случае его интенсивность составит $\overline{I} = 2.2$ кВт/см^2, см. рис. 2d. Фактически это соответствует уменьшению порога генерации до значения $\overline{I}_{\text{thr}} = 264$ Вт/см^2.

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/см^2. 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 лазерной 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. Shalaev, 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. Zywietz, 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. Grudinin, 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. Chickov, 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. Barreteau, 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. А. А. Жаров, Н. А. Жарова, JETP **162**, 844 (2022).