## О лазерной генерации двумерных материалов с накачкой на квазизапертых модах

*М. Ю. Губин*<sup>+\*</sup>, *А. В. Шестериков*<sup>+\*</sup>, *В. С. Волков*<sup>\*</sup>, *А. В. Прохоров*<sup>+\*1)</sup>

+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<sub>2</sub> пленкой Si метаповерхности, в которой совмещены узкоспектральный резонанс квазизапертой моды и широкий экситонный резонанс двумерного материала. Определены условия порога генерации в MoTe<sub>2</sub> 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 эффективноуправляемых 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 эффекВ качестве ближнеполевой накачки будем использовать метаповерхность, составленную из Si дисков радиусом  $R_2$  и высотой H, имеющих смещенное на величину  $\Delta_y$  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

тов. Синхронизация может осуществляться посредством возбуждения т.н. фотонных связанных состояний в континууме [8, 9], приводящих к генерации (квази)запертых мод (K3M) [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.

 $<sup>^{1)}</sup>$ 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 K3M. (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<sub>2</sub> подложке в режиме возбуждения K3M. 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 K3M [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. 1с. При размещении той же метаповерхности на SiO<sub>2</sub> 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  $E_u(k_z)$  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 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 МоТе<sub>2</sub> кристалла чешуйки (флейки) толщиной в один атомарный слой и размерами 1000 × 1000 × 0.7 нм. В таких условиях МоТе<sub>2</sub> можно считать прямозонным полупроводником [20], длина волны  $\lambda_0$  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 МоТе<sub>2</sub>, лежащего поверх поддерживающей КЗМ метаповерхности, см. рис. 2а. При настройке центральной длины волны  $\lambda_0$  фотолюминесценции МоТе<sub>2</sub> на длину волны  $\lambda_{QTM}$  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 МоТе<sub>2</sub> длина волны K3M 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<sub>2</sub> метаструктуры в виде:

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

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

где  $\hbar\omega$  – энергия внешней оптической накачки,  $\alpha$  – мнимая часть показателя преломления для MoTe<sub>2</sub> 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,  $\Gamma$  – коэффициент удержания лазерной моды,  $\beta$  – 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;  $q(N) = a(N - N_{tr}) -$ коэффициент индуцированного усиления. Здесь  $\tau_{nr}$ ,  $\tau_{sp}$  соответствуют времени жизни безызлучательной и спонтанной рекомбинации, С – коэффициент Оже-рекомбинации, а – сечение индуцированного усиления, N<sub>tr</sub> – концентрация электронно-дырочных пар для режима просветления среды,  $v_g = c/n_g$  – групповая скорость генерируемого излучения, с – скорость света в вакууме, полагаем  $n_q = n(\lambda_0)$ . Далее, следуя [24], для монослоя MoTe<sub>2</sub> выбираем  $\tau_{sp} = 3 \,\mathrm{nc}$  (сравните с 4 пс в [13]),  $\tau_{nr} = 23 \,\mathrm{nc}$ , а также  $C = 10^{-40} \,\mathrm{m^6 c^{-1}}$  [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]:

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

$$P(N_s) = \frac{\hbar\omega V}{\alpha} \left( CN_s^3 + \frac{N_s}{\tau_{nr}} + (1-\beta)\frac{N_s}{\tau_{sp}} + \frac{S_s(N_s)}{\Gamma\tau_p} \right).$$
(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 MoTe<sub>2</sub> в условиях с накачкой на длине волны  $\lambda_p$  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  $\varepsilon_r(\omega) = \operatorname{Re}\left[(\overline{n}(\omega))^2\right]$  соответствует дисперсии МоТе<sub>2</sub> без накачки, т.е. когда  $f_0 = 0$ ;  $f_0$  соответствует амплитуде усиления на длине волны  $\lambda_0$  с лоренцевским форм-фактором;  $\omega_0 = 2\pi/\lambda_0$ ,  $\gamma = 1/\tau_p$ . При расчетах использовалась изотропная дисперсия для MoTe<sub>2</sub> [21], т.е.  $\varepsilon_r(\omega) \approx \varepsilon_{\parallel}(\omega)$ , как в [26], поскольку электрическая составляющая K3M



Рис. 2. (Цветной онлайн) (a) – Модель метаструктуры в виде тонкой пленки MoTe<sub>2</sub>, 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  $I_{\text{thr}}$ . (c) и (d) – Визуализация распределения интенсивности электрического поля в пленке MoTe<sub>2</sub> над Si метаповерхностью в режиме генерации K3M в ней: (c) – в отсутствии поля накачки и (d) – при его наличии с надпороговой интенсивностью  $\overline{I} = 2.2 \text{ kBr/cm}^2$ . Ближнее поле нормировано на интенсивность падающей волны. Черными линиями на MoTe<sub>2</sub> 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  $\varepsilon_{\rm eff}(\omega)$  МоТе<sub>2</sub> 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<sub>thr</sub> всей метаструктуры в целом. Для рассматриваемого случая с рис. 2а пороговые условия соответствуют  $\varepsilon_{\rm eff} = 2.3207 - 0.5012 i$ и при выборе  $N_{tr} = 1.61 \cdot 10^{17} \, \mathrm{cm}^{-3}$ и $a = 7.08 \cdot 10^{-18} \, \mathrm{m}^2$ получим  $k_{q} = -0.8$ , что соответствует  $g_{\rm thr} = 95194\,{\rm cm}^{-1}$  и пороговой интенсивности ближнеполевой накачки  $I_{
m thr} = 23.78\,{
m kBr/cm^2}$  (с пороговой мощностью  $P_{\rm thr} = 0.238 \,{\rm MBr}$ ) и реализуется при концентрации носителей  $N_{\rm thr} = 1.51 \cdot 10^{18} \,{\rm cm}^{-3}$ .

Численное моделирование ближнеполевого отклика рассматриваемой метаструктуры осуществлялось посредством COMSOL Multiphysics. Для моделирования тонкой пленки MoTe<sub>2</sub> 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:

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

где h = 0.7 нм – реальная толщина слоя МоТе<sub>2</sub>,  $h_F = 10$  нм – толщина эффективного слоя МоТе<sub>2</sub>, используемая в численном моделировании.

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

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<sup>2</sup>. 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).
- 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).
- A. V. Shesterikov, M. Yu. Gubin, S. N. Karpov, and A. V. Prokhorov, JETP Lett. **107**, 435 (2018).
- 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).
- P. Tonkaev and Yu. Kivshar, JETP Lett. **112**, 615 (2020).
- A. I. Kuznetsov, A. E. Miroshnichenko, Y. H. Fu, J. Zhang, and B. Luk'yanchuk, Sci. Rep. 2, 492 (2012).
- 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).
- N.M. Shubin, V.V. Kapaev, and A.A. Gorbatsevich, JETP Lett. **116**, 205 (2022).
- A. M. Chernyak, M. G. Barsukova, A. S. Shorokhov, A. I. Musorin, and A. A. Fedyanin, JETP Lett. 111, 46 (2020).
- C. W. Hsu, B. Zhen, A. D. Stone, J. D. Joannopoulos, and M. Soljačić, Nat. Rev. Mater. 1, 16048 (2016).
- A. B. Evlyukhin, V. R. Tuz, V. S. Volkov, and B. N. Chichkov, Phys. Rev. B 101, 205415 (2020).
- A. V. Prokhorov, A. V. Shesterikov, M. Yu. Gubin, V. S. Volkov, and A. B. Evlyukhin, Phys. Rev. B 106, 035412 (2022).
- Y. Li, J. Zhang, D. Huang, H. Sun, F. Fan, J. Feng, Z. Wang, and C. Z. Ning, Nature Nanotechnol. **12**, 987 (2017).
- G.A. Ermolaev, D.V. Grudinin, Y.V. Stebunov et al. (Collaboration), Nat. Commun. 12, 854 (2021).
- M. M. Glazov and E. L. Ivchenko, JETP Lett. **113**, 10 (2021).
- 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).
- A.B. Evlyukhin, T. Fischer, C. Reinhardt, and B.N. Chichkov, Phys. Rev. B 94, 205434 (2016).

- A. B. Evlyukhin and B. N. Chickov, Phys. Rev. B 100, 125415 (2019).
- D. Ghazaryan, M.T. Greenaway, Z. Wang et al. (Collaboration), Nat. Electron. 1, 344 (2018).
- I.G. Lezama, A. Arora, A. Ubaldini, C. Barreteau, E. Giannini, M. Potemski, and A.F. Morpurgo, Nano Lett. 15, 2336 (2015).
- 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).
- 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).
- C. Z. Ning, IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron. 19, 1503604 (2013).
- 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).
- U. Zywietz, A.B. Evlyukhin, C. Reinhardt, and B.N. Chichkov, Nat. Commun. 5, 3402 (2014).
- 30. А.А. Жаров, Н.А. Жарова, ЈЕТР 162, 844 (2022).