

# 谐振腔-单层二硫化钼系统中的高阶腔耦合等离子极化激元\*

侯磊<sup>1)</sup> 关舒阳<sup>1)</sup> 尹俊<sup>1)</sup> 张语军<sup>1)</sup> 肖宜明<sup>1)</sup> 徐文<sup>1)2)3)†</sup> 丁岚<sup>1)‡</sup>

1) (云南大学物理与天文学院, 昆明 650091)

2) (中国科学院合肥物质科学研究院固体物理研究所, 材料物理重点实验室, 合肥 230031)

3) (网联光仪科技有限公司, 深圳 518118)

(2024年8月6日收到; 2024年10月14日收到修改稿)

以单层 MoS<sub>2</sub> 为代表的二维过渡金属硫族化合物, 因具有可调谐的非零带隙, 故应用在光电子学器件中要比石墨烯更具优势. 本文使用经典电磁理论和有限元分析方法, 研究了谐振腔中腔模与单层 MoS<sub>2</sub> 等离子极化激元之间耦合形成的腔耦合等离子极化激元, 并重点计算和验证了其中高阶模式的特性. 考虑到化学气相沉积法生长的单层 MoS<sub>2</sub> 中衬底、多晶和缺陷会引起弱电子局域化, 从而导致基于自由电子气假设的 Drude 模型准确性变差, 故本文在理论和仿真中使用了 Drude-Smith 模型描述单层 MoS<sub>2</sub> 光电导率, 该模型通过拟合实验数据得到. 基于此, 不仅导出了高阶腔耦合等离子极化激元的色散方程, 并求解出了其色散曲线, 还通过仿真计算验证了这些高阶模式的存在性, 分析了其基本性质以及弱电子局域化的影响. 上述结果能加深对二维材料等离子极化激元的耦合激发以及特性调控的理解, 所用理论模型也能推广到其他低维、拓扑量子材料相关的等离子系统当中.

**关键词:** 等离子极化激元, 单层 MoS<sub>2</sub>, 谐振腔, 太赫兹

**PACS:** 71.36.+c, 42.60.Da, 87.50.U-

**DOI:** 10.7498/aps.73.20241106

**CSTR:** 32037.14.aps.73.20241106

## 1 引言

自从 2004 年 Novoselov 等<sup>[1]</sup> 第一次剥离出单层碳原子层结构——石墨烯以来, 这种二维 (2D) 材料就由于其优越的物理性质而激发了学界极大的研究兴趣, 例如独特能带结构引起的超高电导率和良好热传导性能等<sup>[2,3]</sup>. 石墨烯研究的发展开启了二维材料体系, 对物理学、材料学、光电子学等领域有着深远的影响, 两人也因此获得了 2010 年诺贝尔物理学奖.

作为典型的零带隙二维 Dirac 半金属<sup>[4,5]</sup>, 单层石墨烯能带交叉形成的 Dirac 点使得其电子跃迁通道无法关闭, 因此其光电性能的可调性较差, 这一缺点限制了石墨烯在光电子学中的许多器件应用. 因此, 具有非零带隙的二维材料受到了更多关注, 如单层或少层过渡金属二硫族化合物 (TMD)<sup>[6-8]</sup> 和黑磷<sup>[9-11]</sup> 等. 其中, 块体 TMD 通常是间接带隙半导体材料, 它们层与层之间依靠范德瓦耳斯力结合, 易剥离形成少层和单层. 以二硫化钼 (MoS<sub>2</sub>) 为例, 块体 MoS<sub>2</sub> 可剥离为厚度约 0.65 nm 的单层 MoS<sub>2</sub>, 从而转变为带隙约 1.66 eV 的直接

\* 国家自然科学基金 (批准号: 12364033, U2230122, U2067207)、云南省基础研究专项 (批准号: 202401AS070135)、云南省高层次人才支持计划 (批准号: YNWR-QNBJ-2018-037) 和云南大学研究生科研创新项目 (批准号: KC-23233799) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: wenxu\_issp@aliyun.com

‡ 通信作者. E-mail: dinglan@ynu.edu.cn

带隙半导体<sup>[5]</sup>. 单层 TMD 的非零直接带隙, 不仅更易进行光学和电学调控, 还具有更优越的带间吸收和光电特性<sup>[12]</sup>, 从而弥补了石墨烯在很多光电子器件应用中的缺陷.

在等离光子学领域, 二维 TMD 也被认为是红外和太赫兹 (THz) 频段非常理想的等离激元材料, 为实现具有低损耗和灵活可调性的紧凑红外/THz 器件提供了可能. 近年来, 许多与二维 TMD 等离激元相关的工作更侧重于研究微纳结构与 TMD 等离激元间的耦合, 以及耦合对器件吸收、发射性能的提升与调控<sup>[13-22]</sup>. 例如, 2019 年 Sun 等<sup>[18]</sup>展示了一种通过结合银纳米立方体和银薄膜的高性能柔性 MoS<sub>2</sub> 光电探测器. 2021 年 Leng 等<sup>[19]</sup>在周期孔阵列/悬浮 TMD/超薄 Ag 膜复合结构上实现了表面等离激元对二次谐波信号的增强. 同年 Lan 等<sup>[20]</sup>基于单层 MoS<sub>2</sub> 制备了栅极可调的等离激元光电效应晶体管 (Photo-FETs), 实现了  $2.7 \times 10^4 \text{ A} \cdot \text{W}^{-1}$  的超高光响应率, 与原始的光电效应晶体管相比, 光电流提高了 7.2 倍. 2022 年 Petrić 等<sup>[21]</sup>在室温和低温下对单个金偶极子纳米天线上的 MoSe<sub>2</sub> 单层进行了研究, 基于偶极子共振及等离激元, 获得了约 130 meV 的总调谐. 2024 年 Zhu 等<sup>[22]</sup>使用电致发光谱来探测由纳米级等离激元隧道结和少层 TMD 组成的杂化结构中等离激元与激子的耦合, 发现在强耦合状态下 Rabi 劈裂超过 50 meV.

深入对比可发现, 现有实验或器件研究文献中使用的二维 TMD 薄膜大部分是机械剥离的小尺寸高质量样品, 或者是 MBE 等方法制备的薄膜中特别选取的高质量部分, 鲜有考虑 CVD 或类似方法生长的常规大面积薄膜, 因此也就较大程度地低估甚至忽略了二维 TMD 中衬底、多晶及缺陷的影响. 此外, 很多理论及模拟研究中所采用的二维 TMD 参数, 如迁移率、动量散射时间等, 都假定为高质量样品中或理论上的理想参数, 而和常规样品中的真实情况有明显差距. 事实上, 在过往工作中<sup>[5,23]</sup>已有实验证明了在二维 TMD 等量子材料薄膜中, 弱电子局域化会导致迁移率及载流子动量散射时间的降低, 其光学参数遵循 Drude-Smith 模型. 在研究中使用较为理想化的参数, 固然对原型器件高性能的展示或物理机制的简化分析有益, 但却不利于二维 TMD 在等离器件中的工程化应用和优化设计. 这也是本文在计算中采用 Drude-Smith 模型描述 CVD 生长的单层 MoS<sub>2</sub> 光电导率的主要考量.

另一方面, 当前许多微纳结构辅助激发二维 TMD 等离激元的研究中, 所涉及的微纳结构往往图样较复杂冗余或加工难度较大, 这在一定程度上限制了系统中等离极化激元解析模型的导出和深入讨论. 为了解决这方面的困难, 人们或使用半经典理论, 或简化用于耦合等离极化激元的微纳结构, 取得了部分进展. 例如, 在过去我们曾针对较大尺寸 (约 mm 级) 简单谐振腔中的二维 TMD, 使用经典电磁理论导出了基模与二维材料等离激元的耦合模型, 研究了这类腔耦合等离极化激元的性质<sup>[24]</sup>. 然而, 目前尚未对腔耦合等离极化激元进行实验或模拟验证, 对其中高阶模式的存在与否也并不知晓, 这正是本文探讨的主题.

基于经典电磁理论和有限元分析方法 (finite element method, FEM), 本文主要研究了不对称谐振腔中单层 MoS<sub>2</sub> 的等离极化激元在 THz 频段的高阶激发, 导出了高阶腔耦合等离极化激元色散方程的解析形式, 并使用 Drude-Smith 模型描述的 MoS<sub>2</sub> 光电导率对其进行了求解计算. 同时, 文章使用 FEM 模拟验证了高阶腔耦合等离极化激元的存在性, 并分析了其局域参数、场分布等特性, 这些模拟结果与理论模型吻合良好. 本文所得理论方法不仅可扩展并分析其他二维半导体或拓扑材料薄膜中等离激元与谐振腔的耦合, 还对设计 THz 频段等离激元激光器、吸收器等具有潜在价值.

## 2 理论模型

谐振腔是增强光与物质相互作用最简单的结构之一, 考虑如图 1 所示的非对称谐振腔等离系统 (asymmetric cavity plasmonic system, ACPS), 它由约毫米尺度 Fabry-Pérot (FP) 谐振腔、二维 TMD (单层 MoS<sub>2</sub>) 及其衬底构成. 建立图示坐标系,  $z$  是系统厚度方向, 设 ACPS 在  $x$  和  $y$  方向上是无限大的. 谐振腔上下端面通常是金属, 但在 THz 频段金属可直接近似为理想电导体 (perfect electric conductor, PEC), 因此能完全反射低频电磁波. 考虑到单层 MoS<sub>2</sub> 厚度约 1 nm, 远小于 THz 波的波长及系统的腔长, 故在理论和模拟计算中将其近似为厚度为 0 的电导性边界, 其复光电导率为  $\sigma(\omega)$ ,  $\omega$  为 THz 波光子具有的角频率. 设单层 MoS<sub>2</sub> 处于  $z = 0$  处, 则该谐振腔被 MoS<sub>2</sub> 层分为两个区域, MoS<sub>2</sub> 之上  $z > 0$  的区域 1 是厚度

$L_1$  的空气层, 而  $\text{MoS}_2$  之下  $z < 0$  的区域 2 是厚度  $L_2$  的蓝宝石衬底, 因此该体系在  $z$  方向是不对称结构. 在 THz 频段, 空气和蓝宝石的介电常数分别为  $\varepsilon_1 = 1$  和  $\varepsilon_2 = 9.42$  [25].

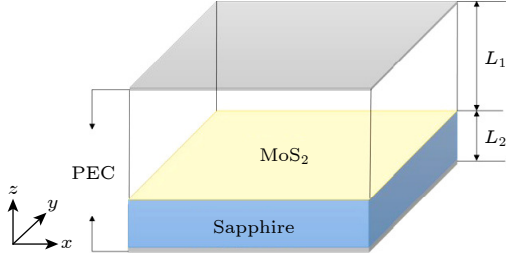


图 1 非对称谐振腔-单层  $\text{MoS}_2$  系统结构示意图

Fig. 1. Diagram of the asymmetric cavity-monolayer  $\text{MoS}_2$  system.

从光与物质相互作用的角度看, 单层  $\text{MoS}_2$  能支持电子的集体振荡, 即等离子激元; FP 谐振腔提供了频率可调的电磁模式, 即特定的光子; 二者满足能量和动量匹配条件时将耦合形成“腔耦合等离子极化激元”(cavity coupled plasmon polariton, CCPP). 大部分非磁材料中等离子极化激元主要由横磁 (transverse magnetic, TM) 模电磁波激发, 故在此假设系统中 THz 波的电场和磁场分量分别为  $\mathbf{E} = \exp[i(\beta x - \omega t)](E_x, 0, E_z)^T$  和  $\mathbf{H} = \exp[i(\beta x - \omega t)](0, H_y, 0)^T$ . 此外,  $\beta = k_x$  是 CCPP 的传播常数, 即波矢  $x$  分量, 它在区域 1, 2 及  $\text{MoS}_2$  中均是连续的; 波矢  $z$  分量满足  $k_{jz}^2 = \varepsilon_j k_0^2 - \beta^2$ , 角码  $j = 1$  或  $2$  用于标记不同的区域, 其中  $k_0 = \omega/c$  是真空波矢,  $c$  为真空光速,  $\varepsilon_j$  为区域  $j$  的介电常数. 根据耦合波方程和磁场分量波动方程可得出 TM 模三个场分量 ( $E_x, H_y, E_z$ ) 满足:

$$\begin{cases} E_x = -i \frac{1}{\omega \varepsilon_0 \varepsilon_j} \frac{\partial H_y}{\partial z}, \\ E_z = -\frac{\beta}{\omega \varepsilon_0 \varepsilon_j} H_y, \\ \frac{\partial^2 H_y}{\partial z^2} + (k_0^2 \varepsilon_j - \beta^2) H_y = 0. \end{cases} \quad (1)$$

设图 1 所示系统中磁场的形式为

$$H_y(z) = \begin{cases} A \exp(ik_{1z}z) + A \exp[ik_{1z}(z - L_1)], & z > 0, \\ B \exp(ik_{2z}z) + B \exp[ik_{2z}(z - L_2)], & z < 0. \end{cases} \quad (2)$$

将 (2) 式代入 (1) 式中, 可导出电场  $x$  分量为

$$E_x(z) = \begin{cases} A \frac{k_{1z}}{\omega \varepsilon_0 \varepsilon_1} \exp(ik_{1z}z) - A \frac{k_{1z}}{\omega \varepsilon_0 \varepsilon_1} \\ \times \exp[ik_{1z}(z - L_1)], & z > 0, \\ B \frac{k_{2z}}{\omega \varepsilon_0 \varepsilon_2} \exp(ik_{2z}z) - B \frac{k_{2z}}{\omega \varepsilon_0 \varepsilon_2} \\ \times \exp[ik_{2z}(z - L_2)], & z < 0. \end{cases} \quad (3)$$

(2) 式和 (3) 式是尚未考虑  $\text{MoS}_2$  边界时的过渡形式, 要在引入了边界条件的  $\sigma$  并求解之后,  $\text{MoS}_2$  的吸收等影响才会进入到模型当中. 如前所述, 单层  $\text{MoS}_2$  给  $z = 0$  引入了电导性边界, 故根据该位置的连续性条件  $E_x(0^+) = E_x(0^-)$  和  $H_y(0^+) - H_y(0^-) = \sigma E_x(0)$  可进一步导出 CCPP 的色散方程通式:

$$\frac{\varepsilon_1}{k_{1z}} \cot(k_{1z}L_1) + \frac{\varepsilon_2}{k_{2z}} \cot(k_{2z}L_2) = \frac{i\sigma}{\omega \varepsilon_0}. \quad (4)$$

考虑到  $\varepsilon_1 < \varepsilon_2$  及不同区域波矢为  $k_j = \varepsilon_j^{1/2} k_0$ , 易得  $k_1 < k_2$ , 可进一步证明对于  $\beta < k_1 < k_2$ ,  $k_1 < \beta < k_2$  和  $k_1 < k_2 < \beta$  三种情况, (4) 式可改写为 3 种不同形式, 分别对应 CCPP 的类 FP 模式 (FP-like-mode, FPLM)、类表面等离子激元模式 (surface-plasmon-like mode, SPLM) 以及准束缚模式 (quasi-localized mode, QLM) [25]. 过去的工作仅计算过上述 3 类 CCPP 的基模, 然而理论上除了 SPLM 只具有基模外, FPLM 和 QLM 还应支持高阶模式的激发. 下面将对这些高阶模式的色散方程、模式存在性及场分布特点进行深入讨论.

当  $\beta < k_1 < k_2$  时, CCPP 类型属于 FPLM, 此时  $k_{1z} = (\varepsilon_1 k_0^2 - \beta^2)^{1/2}$  及  $k_{2z} = (\varepsilon_2 k_0^2 - \beta^2)^{1/2}$  为实函数, 其色散方程就是 (4) 式给出的常规形式, 解得其高阶模式满足如下关系:

$$\begin{cases} \frac{\varepsilon_1}{\sqrt{\varepsilon_1 k_0^2 - \beta^2}} \cot\left(L_1 \sqrt{\varepsilon_1 k_0^2 - \beta^2}\right) \\ + \frac{\varepsilon_2}{\sqrt{\varepsilon_2 k_0^2 - \beta^2}} \cot\left(L_2 \sqrt{\varepsilon_2 k_0^2 - \beta^2}\right) = \frac{i\sigma}{\omega \varepsilon_0}, \\ L_j \sqrt{\varepsilon_j k_0^2 - \beta^2} \in (N_F \pi, N_F \pi + \pi), \\ N_F = 1, 2, 3, \dots \end{cases} \quad (5)$$

式中两个余切函数项的角度取值只要有一个超出  $(0, \pi)$  区间均可得到高阶 FPLM, 其场分布应与高阶 FP 模式非常相似.

当  $k_1 < k_2 < \beta$  时, CCPP 类似于沿空气/ $\text{MoS}_2$ /

蓝宝石界面传播的表面等离子激元, 故称为 SPLM. 此时  $k_{1z} = i(\beta^2 - \varepsilon_1 k_0^2)^{1/2}$  且  $k_{2z} = i(\beta^2 - \varepsilon_2 k_0^2)^{1/2}$  均为虚数, (4) 式可变换为

$$\frac{\varepsilon_1}{\sqrt{\beta^2 - \varepsilon_1 k_0^2}} \coth \left( L_1 \sqrt{\beta^2 - \varepsilon_1 k_0^2} \right) + \frac{\varepsilon_2}{\sqrt{\beta^2 - \varepsilon_2 k_0^2}} \coth \left( L_2 \sqrt{\beta^2 - \varepsilon_2 k_0^2} \right) = -\frac{i\sigma}{\omega\varepsilon_0}. \quad (6)$$

显然该色散方程中不包含周期函数, 只能解出基模. 因此, 本文探讨的高阶 CCPP 中不包含高阶 SPLM, 而仅在后面的模拟计算中验证 SPLM 基模的存在和特性.

当  $k_1 < \beta < k_2$  时, CCPP 同时结合了 FP 模式和表面等离子激元的部分特征, 称其为 QLM. 两个波矢分量分别写作  $k_{1z} = i(\beta^2 - \varepsilon_1 k_0^2)^{1/2}$  和  $k_{2z} = (\varepsilon_2 k_0^2 - \beta^2)^{1/2}$ , 代入 (4) 式可导出高阶 QLM 色散关系:

$$\begin{cases} -\frac{\varepsilon_1}{\sqrt{\beta^2 - \varepsilon_1 k_0^2}} \coth \left( L_1 \sqrt{\beta^2 - \varepsilon_1 k_0^2} \right) \\ + \frac{\varepsilon_2}{\sqrt{\varepsilon_2 k_0^2 - \beta^2}} \cot \left( L_2 \sqrt{\varepsilon_2 k_0^2 - \beta^2} \right) = \frac{i\sigma}{\omega\varepsilon_0}, \\ L_2 \sqrt{\varepsilon_2 k_0^2 - \beta^2} \in (N_Q \pi, N_Q \pi + \pi), \\ N_Q = 1, 2, 3, \dots \end{cases} \quad (7)$$

式中, 余切函数项的角度取值超出  $(0, \pi)$  区间时, 即可算出对应的高阶 QLM 色散曲线.

从 CCPP 色散方程的 (4) 式—(7) 式可知, 单层 MoS<sub>2</sub> 的光电导率  $\sigma(\omega)$  会影响其等离极化激元特性. 过去的许多文献通常假设单层 MoS<sub>2</sub> 等二维 TMD 在 THz 频段满足自由电子气近似, 使用 Drude 模型描述  $\sigma(\omega)$ . 如前所述, 对 CVD 等方法生长的常规大面积薄膜而言, Drude 模型较大程度地低估甚至忽略了样品中衬底、多晶和缺陷等的影响, 因此给出的动量散射时间和迁移率都偏高. 许多实验工作已经证明了衬底、多晶和缺陷等会在样品薄膜中引起弱电子局域, 降低动量散射时间和迁移率, 从而导致光电导率的行为偏离 Drude 模型, 而需要采用 Drude-Smith 模型描述. 基于我们过去工作通过实验得出的相关参数<sup>[23,25]</sup>, 本文将使用如下 Drude-Smith 公式来表征系统中 MoS<sub>2</sub> 的 THz 响应:

$$\sigma(\omega) = \frac{\sigma_0}{1 - i\omega\tau} \left( 1 + \frac{C}{1 - i\omega\tau} \right), \quad (8)$$

式中,  $\sigma_0 = e^2 n_e \tau / m^*$  为直流电导率, 其中电子浓度  $n_e$  取  $6.2 \times 10^{16} \text{ m}^{-2}$ , 电子动量散射时间  $\tau$  取 85 fs, 有效电子质量  $m^*$  约为  $0.39m_e$ ,  $m_e$  是电子静质量. 局域因子  $C$  表征电子局域化的程度, 在 0 到 -1 之间取值: 若  $C = 0$  则 (8) 式简化为传统 Drude 模型, 即电子不发生局域;  $C = -1$  表示电子背向散射引起的局域化最强. 根据我们前期工作的测量结果<sup>[23,25]</sup>, 发现不同衬底上的样品局域因子不同, 在石英衬底上的局域因子为  $C = -0.24$ , 而蓝宝石衬底上为  $C = -0.75$ , 前者更接近 0, 故在粗略计算中可以近似忽略弱电子局域影响而使用 Drude 模型, 而后者较接近 -1, 其弱电子局域的影响在较高精度的计算中不可忽略. 本文选取蓝宝石衬底 ( $C = -0.75$ ) 正是为了考虑弱电子局域不可忽略的情况, 从而让计算结果更符合常规样品的真实情况.

### 3 结果与讨论

在 0.1—1.0 THz 范围 (对应光子能量 0.4—4.1 meV), 由 (8) 式及相关特征参数计算出的单层 MoS<sub>2</sub> 光电导率频谱如图 2(a) 所示. 可见  $\sigma(\omega)$  实部随频率升高而增大, 虚部在该频段则小于 0, 这与经典 Drude 模型的规律正好相反, 具有弱电子局域效应的典型特征. 衬底邻近效应、多晶和缺陷对电子的背向散射都会使自由电子在总体上呈现出运动受限制的效果, 此即所谓的弱电子局域效应. 因此, 可采用无相互作用的经典电荷载流子构成的弱局域 Drude 电子气进行近似处理, 这正是 (8) 式的物理基础. 而图 2(b) 则给出了实验测得的蓝宝石衬底折射率和消光系数, 可以明显看出折射率和消光系数在此频段几乎是频率无关的, 因此在计算中视为无色散的参数.

由于高阶模式具有较宽的电磁能量空间分布范围, 故 ACPS 的纵向尺寸应突破亚波长的限制, 约从微米进入毫米尺度. 设  $L_1 = 0.26 \text{ cm}$  及  $L_2 = 0.11 \text{ cm}$ , 基于图 2 给出的单层 MoS<sub>2</sub> 光电导率分别求解 (5) 式—(7) 式的色散方程, 即可得出 FPLM, SPLM 及 QLM 三类等离极化激元的色散曲线, 如图 3 所示. 为了更好地区分它们, 图中也画出了区域 1 和区域 2 对应的光锥线  $k_1$  和  $k_2$ . 如前所述, 只

有 FPLM 和 QLM 具有高阶模式, 而 SPLM 只具备基模, 这与图 3(a) 呈现的计算结果一致. 在同频率下, SPLM 的传播常数  $\beta$  最大, 同时处于两个区域的光锥线之下, 因此在两种介质中都应该呈现出表面波特性, 对 THz 波局域效果最明显; QLM 的传播常数次之, 处于区域 1 的光锥线之下, 但高于

区域 2 的光锥线, 故它在区域 1 中具有表面波特性, 但在区域 2 呈现波导中导模 (驻波) 的特征; 而 FPLM 的  $\beta$  最小, 同时位于两个区域光锥线之上, 意味着该模式在空气和衬底中都应该有类似波导中导模的场分布. 为了定量地描述这三种模式的电磁能量局域效果, 通常用  $\lambda_{\text{air}}/\lambda_p = [\text{Re}(\beta)c]/\omega$  来

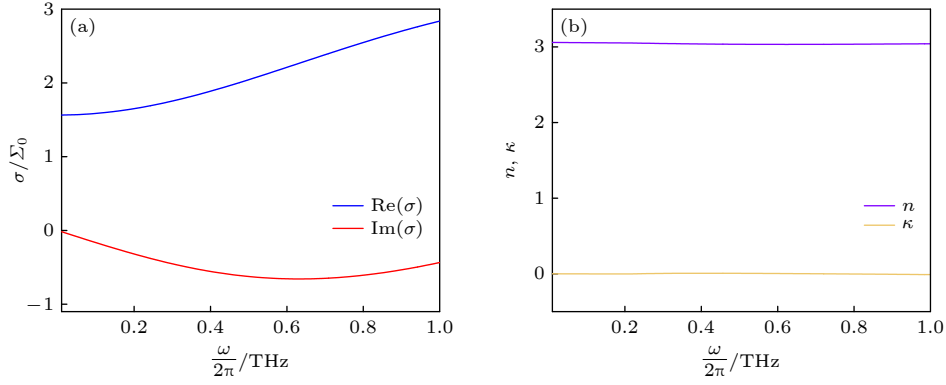


图 2 (a) 单层 MoS<sub>2</sub> 光电导率随频率的变化; (b) 蓝宝石衬底的复折射率随频率的变化. 图 (a) 中使用普适电导率  $\Sigma_0 = e^2/4\hbar$  对光电导率实部和虚部做归一化

Fig. 2. (a) Frequency dependency of optical conductivity of monolayer MoS<sub>2</sub>; (b) frequency dependency of the complex refractive index of the sapphire substrate. In panel (a) both the real and imaginary parts of the optical conductivity are normalized by universal conductivity  $\Sigma_0 = e^2/4\hbar$ .

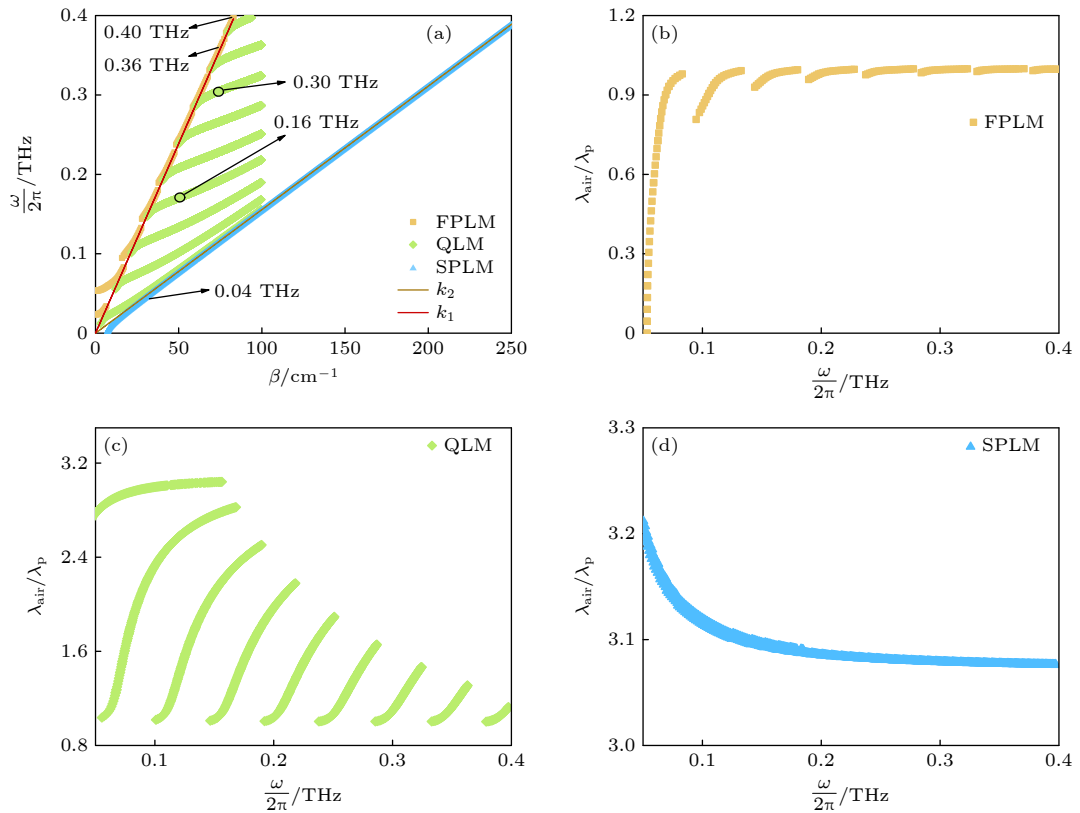


图 3 (a) 非对称谐振腔等离子系统中 CCPP 的色散关系图; (b) FPLM, (c) QLM 和 (d) SPLM 模式的局域程度

Fig. 3. (a) Dispersion relations of the CCPPs supported by the ACPS and the localization of (b) FPLM, (c) QLM, and (d) SPLM modes.

表征它们的局域程度<sup>[26,27]</sup>, 如图 3(b)–(d). 式中,  $\lambda_{\text{air}} = 2\pi c/\omega$  是空气中的波长,  $\lambda_p = 2\pi/\text{Re}(\beta)$  为等离极化激元的折合波长或模式波长. 图 3 所示的结果证明了我们前面的分析, 即总体而言 SPLM 的局域程度最高, QLM 次之, FPLM 局域程度最弱.

为了验证上述理论分析, 接下来使用 FEM 方法 (COMSOL Multiphysics) 对图 1 所示 ACPS 中的 THz 等离极化激元进行了模拟计算. 为了提升计算效率, 如图 4(a) 所示, 使用二维空间简化  $y$  方向, 并设置  $x$  方向为周期性单元, 宽度为  $900 \mu\text{m}$ . 单层  $\text{MoS}_2$  以电导边界描述, 腔镜设为 PEC 边界, 其他结构和物质参数如前文所述. 在电偶极子激发下, 对频率进行参数扫描, 得到每个频率处的场分布, 根据其分布特性确定其所属模式. 虽然理论上在某些频率点可以同时对应两种或三种模式, 但限于软件的场源设置、计算网格划分以及物理上的模式竞争等因素, 在实际计算中发现, 每个频率最终能稳定形成的模式只有一种. 换言之, 实际能选出的每种模式不一定是同频或同阶, 但这并不影响对理论的验证效果.

模拟结果显示, 在  $0.36$  和  $0.40$  THz 处可分别得到对应于图 3 色散曲线中  $N_F = 7$  和  $N_F = 8$  的高阶 FPLM, 其  $z$  方向电场分布见图 4(b) 和图 4(c). 电磁场能量在系统中的分布确如理论预测, 呈现出不对称的类导波或驻波形式, 因此该模式与单层  $\text{MoS}_2$  的作用较弱, 很难通过改变  $\text{MoS}_2$  特征参量

(如费米能量、动量散射时间) 进行调制, 但该模式却高度依赖于  $L_1$  和  $L_2$ . 从图 4(d) 可见, 只存在基模的 SPLM 能在  $0.04$  THz 处观测到, 这个频率接近色散曲线起始段. 相对高频区, 这个频率属于偏离光锥线较多的区域, 其电磁场分布具有典型的表面等离极化激元形态, 故 THz 波可以与单层  $\text{MoS}_2$  发生较强交互作用, 易受该薄层特征参量的控制, 几乎不受谐振腔尺寸影响. 而对于高阶 QLM, 模拟结果给出了  $0.16$  和  $0.3$  THz 处的场分布, 对应于图 3 色散曲线中的  $N_Q = 3$  和  $N_Q = 6$ . 显然, 该模式在区域 1 是局域在  $\text{MoS}_2$  附近的表面波, 而在区域 2 则是导波形式, 恰恰结合了 SPLM 和 FPLM 的特点. 上述模拟结果与理论模型计算结果吻合良好, 较为直观地证明了高阶 CCPP 的存在性并展示了其场分布特性.

为了突出弱电子局域化的影响, 前面主要考虑了蓝宝石衬底, 即  $C = -0.75$  的情况. 现为了更好地分析弱电子局域对 CCPP 的作用, 模拟计算了不考虑弱电子局域 ( $C = 0$ ) 时 3 种等离极化激元的未归一化场分布, 并将其与考虑弱电子局域 ( $C = -0.75$ ) 的情况进行了对照, 结果如图 5 所示. 因为 SPLM 和 QLM 的局域性相对更显著, THz 波与单层  $\text{MoS}_2$  作用也就更强, 故局域因子改变的影响也就更大. 在  $C = 0$  时, 单层  $\text{MoS}_2$  中的载流子是自由载流子, 其集体共振更易与腔模耦合形成等离极化激元, 这也是传统等离极化激元理论的标准情

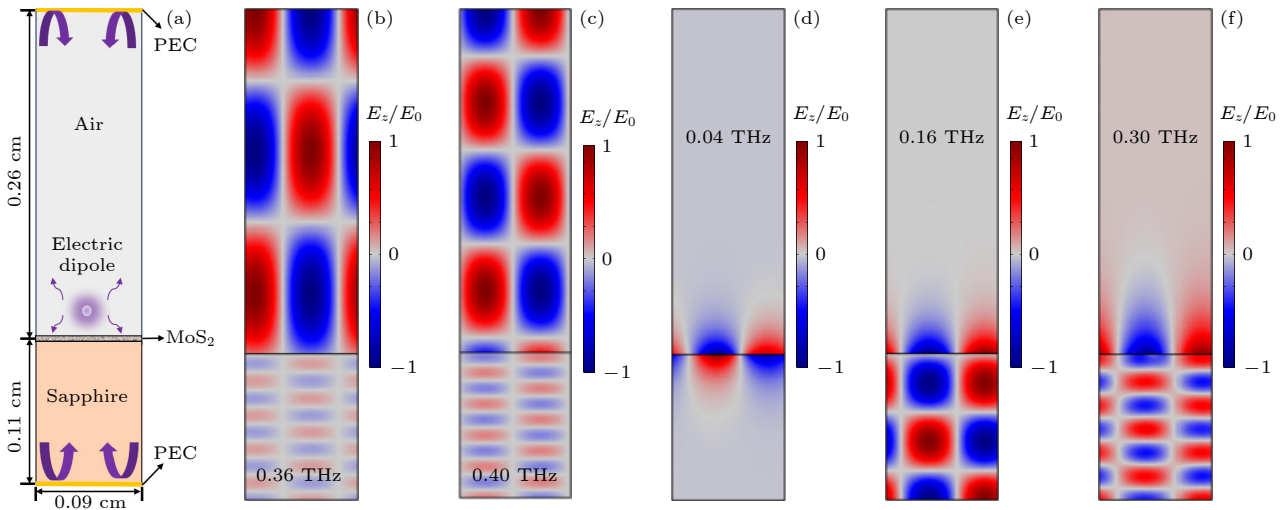


图 4 CCPP 的 FEM 模拟 (a) 模拟模型示意图; (b)  $N_F = 7$  和 (c)  $N_F = 8$  时 FPLM, (d) 基模 SPLM 以及 (e)  $N_Q = 3$  和 (f)  $N_Q = 6$  时 QLM 的电磁场  $E_z$  空间分布. 注意此处电场分量  $E_z$  都已使用各自的最大值  $E_0$  做了归一化

Fig. 4. FEM simulation results of the CCPPs: (a) Diagram of the simulation model. Field distributions of  $E_z$  for the FPLMs of (b)  $N_F = 7$  and (c)  $N_F = 8$ , (d) the fundamental mode of SPLM, and the QLMs of (e)  $N_Q = 3$  and (f)  $N_Q = 6$ . Note that the fields  $E_z$  are normalized by the corresponding maximum values  $E_0$ .

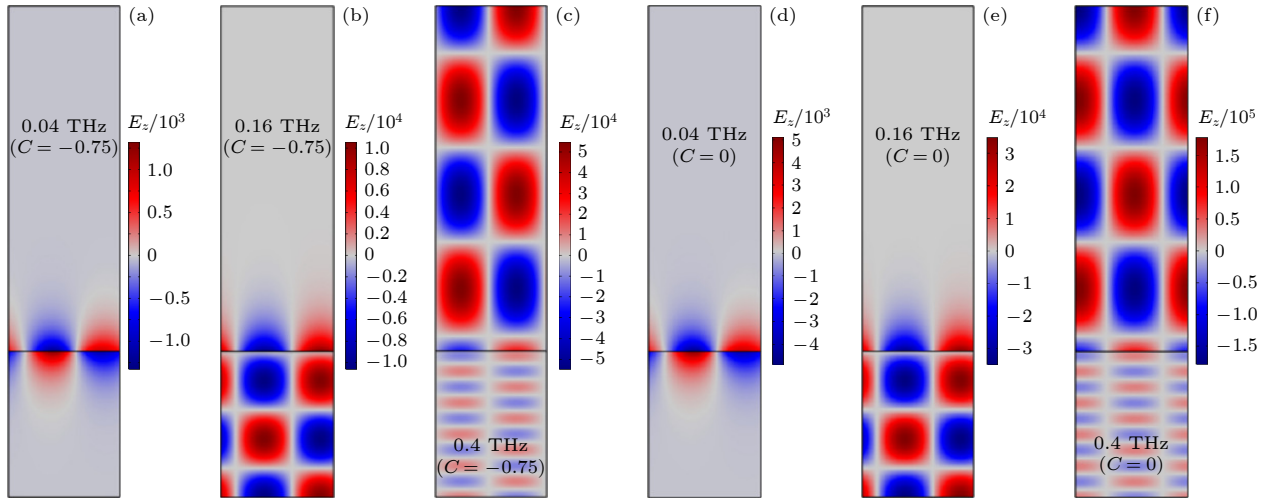


图 5 局域因子  $C$  不同时, CCPP 的 FEM 模拟 (a)–(c)  $C = -0.75$  时的 SPLM (a), QLM (b) 及 FPLM (c); (d)–(f)  $C = 0$  时的 SPLM (d), QLM (e) 及 FPLM (f). 注意此处电场分量  $E_z$  都未做归一化

Fig. 5. FEM simulation results of the CCPPs with different  $C$ : (a)–(c) Field distributions of (a) SPLM, (b) QLM, and (c) FPLM for  $C = -0.75$ ; (d)–(f) results of (d) SPLM, (e) QLM, and (f) FPLM for  $C = 0$ . Note that the fields  $E_z$  are not normalized.

况. 而  $C = -0.75$  意味着弱电子局域化不可忽略, 它的存在会对电子集体振荡形成扰动, 从而减弱腔模与单层  $\text{MoS}_2$  的耦合, 使得同频率下对应的 CCPP 模式场强总体变小, 甚至有的出现空间分布的变化, 见图 5(c) 和图 5(f).

## 4 结 论

本文使用经典电磁学方法, 导出了单层  $\text{MoS}_2$  和谐振腔组成的 ACPS 中不同高阶 CCPP 的色散方程, 并基于谐振腔的非亚波长情况和单层  $\text{MoS}_2$  的弱局域 Drude 电子气假设, 近似得出了 FPLM, SPLM 及 QLM 的色散曲线及局域特性. FEM 模拟结果很好地证明了理论模型的有效性, 展示了 CCPP 的基本性质. 上述结果表明, 即使是生长质量不高的单层  $\text{MoS}_2$  以及非亚波长的结构尺寸, 同样有可能支持等离极化激元的激发与控制, 这为降低某些二维材料等离器件的制备要求提供了思路. 此外, 还证明了除基模等离极化激元外, 高阶 CCPP 也能稳定存在于 ACPS 之中, 而单层  $\text{MoS}_2$  中的弱电子局域则会降低 CCPP 的耦合及场强.

值得一提的是, 本文的理论模型同样适用于其他二维材料, 并可在厚度符合深亚波长条件时扩展到拓扑材料薄膜, 如 100 nm 厚的三维狄拉克半金属  $\text{Cd}_3\text{As}_2$  等. 相对于 THz 波约 100  $\mu\text{m}$  量级的波长, 100 nm 的厚度可忽略, 同样可将该薄膜近似为无厚度的电导边界, 并使用本文模型进行计算. 目

前已有实验研究测出了 100 nm 厚的  $\text{Cd}_3\text{As}_2$  在 THz 频段的光电导率<sup>[5]</sup>, 并发现其在 1.7 THz 附近有明显的光学声子吸收峰, 因此使用了 Drude-Lorentz 模型描述其光电导率. 若将文中的 (8) 式替换为实验拟合得到的 Drude-Lorentz 型光电导率, 并重新设计腔长, 有可能让  $\text{Cd}_3\text{As}_2$  的光学声子峰与腔模、等离激元等发生交互作用, 计算得到更独特的 CCPP 或声子极化激元. 限于篇幅和主题, 此处仅做简单探讨, 不再赘述. 最后, 本文的理论模型和计算结果对设计二维材料在 THz 频段的等离激元激光器、吸收器和波导等也具有潜在价值.

## 参考文献

- [1] Novoselov K S, Geim A K, Morozov S V, Jiang D, Zhang Y, Dubonos S V, Grigorieva I V, Firsov A A 2004 *Science* **306** 666
- [2] Geim A K, Novoselov K S 2007 *Nat. Mater.* **6** 183
- [3] Fan Y C, Shen N H, Zhang F L, Zhao Q, Wu H J, Fu Q H, Wei Z Y, Li H Q, Soukoulis C M 2019 *Adv. Opt. Mater.* **7** 1800537
- [4] Lu W, Ling J W, Xiu F X, Sun D 2018 *Phys. Rev. B* **98** 104310
- [5] Hou L, Yang Y K, Li A L, Wang Q J, Li Q N, Wu M, Ji P C, Zhang Y J, Xiao Y M, Xu W, Xiu F X, Ding L 2023 *Phys. Rev. B* **108** 115416
- [6] Mak K F, Lee C, Hone J, Shan J, Heinz T F 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 136805
- [7] Wang Q H, Kalantar-Zadeh K, Kis A, Coleman J N, Strano M S 2012 *Nat. Nanotechnol.* **7** 699
- [8] Manzeli S, Ovchinnikov D, Pasquier D, Yazyev O V, Kis A 2017 *Nat. Rev. Mater.* **2** 17033
- [9] Liu X, Hou L, Ji P C, Wang Q J, Wu M, Xiao Y M, Xu W,

- Ding L 2023 *Nanophotonics* **12** 4441
- [10] Liu H, Neal A T, Zhu Z, Luo Z, Xu X F, Tomanek D, Ye P D 2014 *ACS Nano* **8** 4033
- [11] Qiao J, Kong X, Hu Z X, Yang F, Ji W 2014 *Nat. Commun.* **5** 4475
- [12] Zhang S J, Pei Y F, Hu S Q, Wu N, Chen D Q, Lian C, Meng S 2023 *Chin. Phys. Lett.* **40** 077502
- [13] Liu X Z, Galfsky T, Sun Z, Xia F N, Lin E C, Lee Y H, Kena-Cohen S, Menon V M 2015 *Nat. Photonics* **9** 30
- [14] Kleemann M E, Chikkaraddy R, Alexeev E M, Kos D, Carnegie C, Deacon W, Pury A C de, Grosse C, Nijs B de, Mertens J, Tartakovskii A I, Baumberg J J 2017 *Nat. Commun.* **8** 1296
- [15] Verre R, Baranov D G, Munkhbat B, Cuadra J, Kall M, Shegai T 2019 *Nat. Nanotechnol.* **14** 679
- [16] Liu W J, Lee B, Naylor C H, Ee H S, Park J, Johnson A T C, Agarwal R 2016 *Nano Lett.* **16** 1262
- [17] Hu G W, Krasnok A, Mazor Y, Qu C W, Alu A 2020 *Nano Lett.* **20** 3217
- [18] Sun B, Wang Z, Liu Z, Tan X, Liu X, Shi T, Zhou J, Liao G 2019 *Adv. Funct. Mater.* **29** 1900541
- [19] Leng Q, Su H, Liu J, Zhou L, Qin K, Wang Q, Fu J, Wu S, Zhang X 2021 *Nanophotonics* **10** 1871
- [20] Lan H Y, Hsieh Y H, Chiao Z Y, Jariwala D, Shih M H, Yen T J, Hess O, Lu Y J 2021 *Nano Lett.* **21** 3083
- [21] Petrić M M, Kremser M, Barbone M, Nolinder A, Lyamkina A, Stier A V, Kaniber M, Müller K, Finley J J 2022 *Nano Lett.* **22** 561
- [22] Zhu Y X, Yang J W, Abad-Arredondo J, Fernández-Domínguez A I, García-Vidal F J, Natelson D 2024 *Nano Lett.* **24** 525
- [23] Wang C, Xu W, Mei H Y, Qin H, Zhao X N, Zhang C, Yuan H F, Zhang J, Xu Y, Li P, Li M 2019 *Opt. Lett.* **44** 4139
- [24] Liu J, Ding L, Zhao C X, Liang C N, Xiao Y M, Zhang J, Xu W 2019 *IEEE Photonics J.* **11** 4800608
- [25] Guo T Y, Hou L, Xu W, Xiao Y M, Ding L 2022 *J. Opt. Soc. Am. B: Opt. Phys.* **39** 1711
- [26] Ding L, Xu W, Zhao C, Wang S, Liu H 2015 *Opt. Lett.* **40** 4524
- [27] Maier S A 2007 *Plasmonics: Fundamentals and Applications* (New York: Springer) p21

## High-order cavity coupled plasmon polaritons in resonant cavity-monolayer MoS<sub>2</sub> system\*

Hou Lei<sup>1)</sup> Guan Shu-Yang<sup>1)</sup> Yin Jun<sup>1)</sup> Zhang Yu-Jun<sup>1)</sup>  
Xiao Yi-Ming<sup>1)</sup> Xu Wen<sup>1)2)3)†</sup> Ding Lan<sup>1)‡</sup>

1) (School of Physics and Astronomy, Yunnan University, Kunming 650091, China)

2) (Key Laboratory of Materials Physics, Institute of Solid State Physics, Hefei Institutes of Physical Science, Chinese Academy of Science, Hefei 230031, China)

3) (Micro Optical Instruments Inc., Shenzhen 518118, China)

( Received 6 August 2024; revised manuscript received 14 October 2024 )

### Abstract

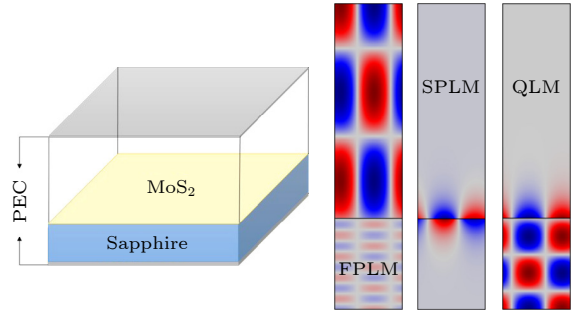
Compared with graphene, two-dimensional (2D) transition metal sulfides, represented by mono-/few-layer MoS<sub>2</sub>, have tunable non-zero bandgap, and thus their applications in optoelectronic devices are more advantageous. By using classical electromagnetic theory and finite element method (FEM), we investigate the cavity coupled plasmon polaritons (CCPPs) formed through the coupling between cavity modes in a resonator and plasmons in monolayer MoS<sub>2</sub>, particularly calculate and verify the properties of the high-order CCPPs. In previous work, it was demonstrated that the substrates, defects, and polycrystalline grains of the CVD grown monolayer MoS<sub>2</sub> usually induce weak electron localization, which leads to the deviation from the Drude model based on the approximation of free electron gas. Therefore, here we use the Drude-Smith model with

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 12364033, U2230122, U2067207), the Basic Research Project of Yunnan Province, China (Grant No. 202401AS070135), the High-level Personnel Training Program of Yunnan Province, China (Grant No. YNWR-QNBJ-2018-037), and the Research Innovation Foundation for Graduate Students of Yunnan University, China (Grant No. KC-23233799).

† Corresponding author. E-mail: [wenxu\\_issp@aliyun.com](mailto:wenxu_issp@aliyun.com)

‡ Corresponding author. E-mail: [dinglan@ynu.edu.cn](mailto:dinglan@ynu.edu.cn)

characteristic parameters obtained experimentally to describe the optical conductivity of monolayer MoS<sub>2</sub> in our theoretical calculation and simulation. Then, we not only derive and solve the dispersion equations of the high-order CCPPs, but also verify the existence and analyze the properties of these high-order modes. Specifically, there are three types of CCPPs in the asymmetric cavity-monolayer MoS<sub>2</sub> system, i.e. the FP-like-modes (FPLMs), the surface-plasmon-like modes (SPLMs), and the quasi-localized modes (QLMs). Among them, the FPLMs and QLMs can support high-order modes whereas the SPLMs only support the fundamental modes. According to our model, we calculate the wave localization properties for the 7th-order and 8th-order FPLM, the 3rd-order and 6th-order QLM, and the SPLM. These theoretical results are in good agreement with the simulation results. Moreover, the effects of weak electron localization are also shown by comparing the field distributions of the CCPPs based on the Drude model with those based on the Drude-Smith model. It is found that weak electron localization can reduce the coupling between the cavity modes and the plasmons in monolayer MoS<sub>2</sub>. These results can deepen our understanding of the excitation of plasmons in 2D materials as well as the modulation of their properties. Furthermore, the theoretical model can also be extended to other plasmonic systems related to low-dimensional and topological quantum materials.



**Keywords:** plasmons, monolayer MoS<sub>2</sub>, cavity, terahertz

**PACS:** 71.36.+c, 42.60.Da, 87.50.U-

**DOI:** [10.7498/aps.73.20241106](https://doi.org/10.7498/aps.73.20241106)

**CSTR:** [32037.14.aps.73.20241106](https://cstr.net.cn/urn:csdn:CSTR:32037.14.aps.73.20241106)

谐振腔-单层二硫化钼系统中的高阶腔耦合等离极化激元

侯磊 关舒阳 尹俊 张语军 肖宜明 徐文 丁岚

**High-order cavity coupled plasmon polaritons in resonant cavity-monolayer MoS<sub>2</sub> system**

Hou Lei Guan Shu-Yang Yin Jun Zhang Yu-Jun Xiao Yi-Ming Xu Wen Ding Lan

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 73, 227102 (2024) DOI: 10.7498/aps.73.20241106

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.73.20241106>

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

## 您可能感兴趣的其他文章

### Articles you may be interested in

基于人工表面等离激元探针实现太赫兹波的紧聚焦和场增强

Tight focus and field enhancement of terahertz waves using a probe based on spoof surface plasmons

物理学报. 2020, 69(5): 054201 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20191531>

基于太赫兹石墨烯等离激元的多参数相位可调谐结构及其应用

Multi-parameter tunable phase transition based terahertz graphene plasmons and its application

物理学报. 2021, 70(22): 224202 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210445>

基于石墨烯等离激元太赫兹结构的传感及慢光应用

Sensing and slow light applications of graphene plasmonic terahertz structure

物理学报. 2024, 73(15): 157802 <https://doi.org/10.7498/aps.73.20240668>

单层MoS<sub>2</sub>薄膜的NaCl双辅助生长方法

Growth of monolayer MoS<sub>2</sub> films dual-assisted by NaCl

物理学报. 2022, 71(12): 128104 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220273>

单层二硫化钼的制备及在器件应用方面的研究

Controllable growth of monolayer MoS<sub>2</sub> films and their applications in devices

物理学报. 2022, 71(10): 108102 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20212447>

等离激元增强的石墨烯光吸收

Enhanced optical absorption of graphene by plasmon

物理学报. 2020, 69(6): 067801 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20191645>