

## 亚波长介质光栅对单层过渡金属硫化物的发光增强

陶广益 齐鹏飞 戴宇琛 石蓓蓓 黄逸婧 张天浩 方哲宇

## Enhancement of photoluminescence of monolayer transition metal dichalcogenide by subwavelength $\text{TiO}_2$ grating

Tao Guang-Yi Qi Peng-Fei Dai Yu-Chen Shi Bei-Bei Huang Yi-Jing Zhang Tian-Hao Fang Zhe-Yu

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 71, 087801 (2022) DOI: 10.7498/aps.71.20212358

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.71.20212358>

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

#### 二维过渡金属硫化物二次谐波: 材料表征、信号调控及增强

Second harmonic generation of two-dimensional layered materials: characterization, signal modulation and enhancement

物理学报. 2020, 69(18): 184210 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200452>

#### 基于亚波长光栅和三明治结构的偏振无关微环谐振器的设计与仿真

Design and simulation of polarization-insensitive ring resonator based on subwavelength grating and sandwiched structure

物理学报. 2021, 70(12): 124201 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20201965>

#### 795 nm亚波长光栅耦合腔垂直腔面发射激光器的超窄线宽特性

Ultra-narrow linewidth characteristics of 795-nm subwavelength grating-coupled cavity vertical cavity surface emitting laser

物理学报. 2021, 70(22): 224207 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210293>

#### 基于磁圆二向色谱的单层MoS<sub>2</sub>激子能量和线宽温度依赖特性

Temperature dependent excitonic transition energies and linewidths of monolayer MoS<sub>2</sub> probed by magnetic circular dichroism spectroscopy

物理学报. 2018, 67(14): 147801 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180615>

#### 基于过渡金属硫族化合物同质结的光电探测器

Photodetectors based on homojunctions of transition metal dichalcogenides

物理学报. 2021, 70(17): 177301 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210859>

#### 过渡金属硫族化合物柔性基底体系的模型与应用

Model and applications of transition metal dichalcogenides based compliant substrate epitaxy system

物理学报. 2018, 67(21): 218102 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20181571>

# 亚波长介质光栅对单层过渡金属硫化物的 发光增强\*

陶广益<sup>1)2)</sup> 齐鹏飞<sup>3)</sup> 戴宇琛<sup>1)</sup> 石蓓蓓<sup>1)</sup> 黄逸婧<sup>1)</sup>  
张天浩<sup>2)</sup> 方哲宇<sup>1)†</sup>

1) (北京大学物理学院, 人工微结构和介观物理国家重点实验室, 北京 100871)

2) (南开大学物理科学学院光子学中心, 弱光非线性光子学教育部重点实验室,  
天津市信息科学光子学材料与技术重点实验室, 天津 300071)

3) (南开大学现代光学研究所, 天津市微尺度光学信息技术科学重点实验室, 天津 300350)

(2021 年 12 月 21 日收到; 2021 年 12 月 28 日收到修改稿)

过渡金属硫化物单层具有直接带隙, 可产生较强的光致发光, 这一特殊的性质使其在光电器件、光电探测等领域具有广泛的应用前景. 由于只有原子级别的厚度以及存在激子的非辐射复合, 其光致发光效率仍有待提高. 本文设计了一种金膜-二氧化钛光栅-过渡金属硫化物单层组合结构, 可大幅提升过渡金属硫化物单层光致发光效率. 利用 Purcell 效应对自发辐射速率进行控制, 得到峰值为 3.4 倍的发光增强. 研究了单层二硫化钨以及单层二硒化钨在设计结构上的光致发光信号, 通过实验证实了过渡金属硫化物单层与亚波长光栅耦合结构中光致发光增强的可行性, 为二维材料在光电器件中的应用提供了一个新思路.

**关键词:** 过渡金属硫化物, 亚波长光栅, 光致发光, Purcell 效应

**PACS:** 78.40.Fy, 78.55.-m, 78.66.-w, 78.70.-g

**DOI:** 10.7498/aps.71.20212358

## 1 引言

近年来, 过渡金属硫化物 (transition metal dichalcogenides, TMDCs) 凭借其优异的光电性能, 成为新材料的研究热点<sup>[1-3]</sup>. TMDCs 单层的晶格结构与石墨烯类似, 呈六边形结构, 其中过渡金属原子和硫族元素原子之间通过共价键结合, 两层硫族元素原子将一层过渡金属原子夹在中间, 构成空间三层结构. 在 TMDCs 块材中, 单层通过范德瓦耳斯力相结合的, 由于层间的弱相互作用力, 使得人们可以通过多种剥离手段获得其单层材料.

TMDCs 材料的带隙取决于其层数, 通常 TMDCs 多层为间接带隙半导体, 当层数减少至单层时, 它们将转变为直接带隙半导体<sup>[4]</sup>. TMDCs 单层不仅具有直接光学带隙, 还有激子束缚能大<sup>[5]</sup>和自旋轨道耦合强<sup>[6]</sup>等特性. 同时, 由于 TMDCs 单层具有天然的空间反演对称性破缺, 动量空间  $K$  和  $K'$  谷附近电子存在自旋-能谷锁定效应, 对光子的响应需要满足特定能谷选择定则, 这种自旋谷极化效应可在室温下被电调控<sup>[7,8]</sup>和光学读取<sup>[9,10]</sup>. 上述优良的光电特性使得 TMDCs 在纳米光子学、光电子学、量子光学、磁光和微电子等方面有着很多潜在的应用<sup>[11-14]</sup>.

\* 国家重点研发计划 (批准号: 2017YFA0206000)、北京市自然科学基金 (批准号: Z180011) 和国家自然科学基金 (批准号: 12027807, 61521004) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: zhyfang@pku.edu.cn

TMDCs 单层作为直接带隙半导体具有很强的光致发光特性, 并且光谱响应范围覆盖了可见光和近红外区域. 层状 TMDCs 材料都特别适合作为光发射和吸收材料. 以二硫化钼 ( $\text{MoS}_2$ ) 为例, 单层  $\text{MoS}_2$  比块材  $\text{MoS}_2$  的光致发光 (photoluminescence, PL) 效率高出  $10^4$  倍 [12–15]. 因此, TMDCs 单层在光电探测器 [15]、发光二极管 [16,17]、低阈值激光器 [18] 等方面有着巨大的应用前景. 目前, 由于只有原子级别厚度, TMDCs 单层与光场相互作用范围小, 对入射光吸收效率仍然偏低, 以单层  $\text{MoS}_2$  为例, 在共振吸收的光谱范围内也只有 10% 的吸收效率, 限制了其在光电子和光伏器件中的应用 [19]. 研究表明, 与入射光场共振的微纳结构可实现 TMDCs 光吸收增强, 比如纳米盘阵列 [20]、光子晶体 [21]、纳米天线 [22]、布拉格光栅耦合微腔 [23]、纳米腔阵列 [24] 等. 此外, TMDCs 单层发光源于激子辐射复合, 但是其非辐射复合速率仍远大于自发辐射速率. 在非辐射复合主导下, 整体的效率仅在  $10^{-2}$  量级 [12]. 因此调控激子的弛豫过程, 增强自发辐射速率可以进一步提高 TMDC 单层的光电性能. 通过外加磁场或掺杂的方式, 可以有效调控激子的复合, 实现 PL 增强 [25,26]. 有研究表明, 将 TMDCs 单层与光子晶体谐振腔 (PPC) 耦合, 利用 Purcell 效应实现 PL 增强效果 [27–29]. 自发辐射的增强可用 Purcell 因子表示:  $F = \frac{3}{4\pi^2} \frac{Q}{V_{\text{mode}}} \left(\frac{\lambda}{n}\right)^3$ , 其中  $Q$  为谐振腔的品质因数,  $V_{\text{mode}}$  为有效模式体积,  $\lambda$  为共振波长,  $n$  为介质的折射率. 通过谐振腔与激子发射峰耦合可以调控弛豫过程中辐射复合和非辐射复合的竞争关系, 从而调控光致发光强度.

本文制备了共振模式在 615 nm 附近的亚波长  $\text{TiO}_2$  光栅, 通过干法转移将 TMDCs 单层转移到光栅上方, 进一步研究光栅结构对单层二硫化钨 ( $\text{WS}_2$ ) 和单层二硒化钨 ( $\text{WSe}_2$ ) 样品的 PL 谱的影响. 与非光栅上的 TMDCs 单层相比, 光栅上的单层 TMDCs PL 强度有了 2—3 倍的增强. 通过分析不同样品的 PL 谱以及荧光寿命谱, 揭示了亚波长二氧化钛光栅对激子弛豫过程的有效调控, 同时, 光栅与激发光的耦合作用也对 TMDCs 单层的光吸收有积极的影响. 本研究证实了在 TMDCs 单层与亚波长光栅耦合结构中研究光与物质相互作用增强可行性, 为介质结构与二维材料复合体系的实际应用提供了一种新的制备策略, 对设计基于二

维半导体高灵敏度光电探测器超薄高效太阳能电池等应用具有重要的指导意义.

## 2 实验方法

在实验中, 需要用到单层  $\text{WS}_2$  和单层  $\text{WSe}_2$ , 这两种样品都是通过胶带机械剥离的方法制备在聚二甲基硅氧烷 (PDMS) 薄膜上. 样品均利用高倍数光学显微镜, 通过衬度大小来判断层数, 实验使用的所有样品都通过光致发光光谱确定为单层. 本研究利用电子束蒸镀法在含有 300 nm 厚的  $\text{SiO}_2$  的硅片表面制备一层 100 nm 厚的金, 一层 10 nm 厚的氧化铝和一层 73 nm 厚的二氧化钛, 然后通过电子束光刻法 (EBL) 在  $\text{TiO}_2$  层中制备出栅宽为 128 nm, 周期为 510 nm, 高为 73 nm 的光栅. 将机械剥离制备的单层 TMDCs 通过 E1-T 多功能高精度二维材料转移平台转移到上述亚波长  $\text{TiO}_2$  光栅上.

采用扫描电子显微镜 (scanning electron microscope, SEM) 表征  $\text{TiO}_2$  光栅的微观形貌; 采用高光谱成像系统 (Cytoviva, HISV3) 采集了  $\text{TiO}_2$  光栅的暗场图像、反射谱和散射谱; 采用共聚焦激光扫描系统 (ISS Q2) 获得样品 PL 扫描图和荧光寿命谱; 采用 PL 光谱测试系统测试样品在室温下的 PL 光谱, 由锁模振荡器 (Tsunami 3941C-25XP) 通过无限远校正工作距离的显微镜聚焦激发样品, 通过 Acton SP2500 型光谱仪收集并处理信号.

## 3 结果和讨论

### 3.1 器件的设计结构及表征

本文研究的单层  $\text{WS}_2/\text{TiO}_2$  光栅/衬底结构原理图如图 1(a) 所示, 其中灰色和黄色层分别代表了 10 nm 的氧化铝间隔层和 100 nm 的金层, 浅蓝色的栅状结构是本文设计的亚波长  $\text{TiO}_2$  光栅, 其高为 73 nm, 周期 510 nm, 栅宽 128 nm. 在上述结构中, 金层可以反射透射光提高 TMDC 单层对光的吸收利用, 同时反射 TMDCs 单层发出的光, 提高收集效率. 氧化铝层可以阻隔 TMDCs 单层与金层, 避免直接接触导致激子猝灭. 该光栅的期望共振波段与单层  $\text{WS}_2$  的激子波段对准, 光栅上面是  $\text{WS}_2$  单层, 通过聚焦激光激发该样品. 在单层

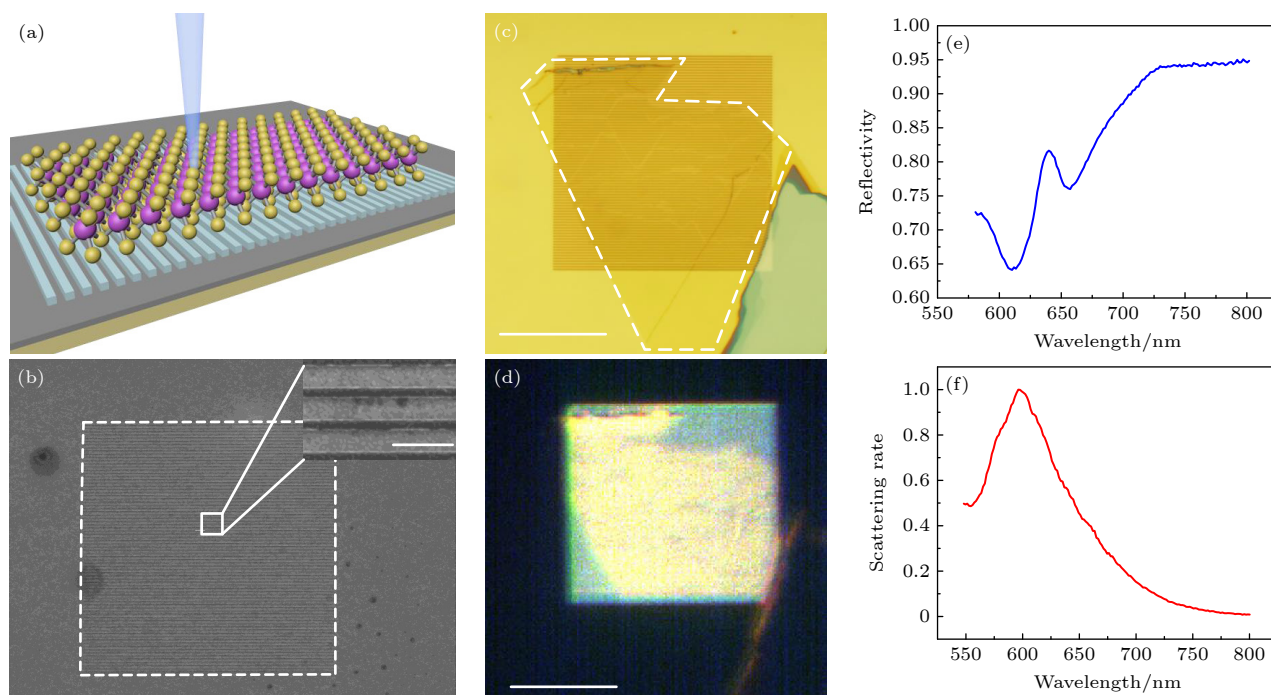


图 1 (a) 探测样品光致发光信号示意图; (b) 光栅 SEM 图像 (插图为局部放大图); (c) 样品光学显微镜图像; (d) 样品暗场图像; (e) 光栅反射谱; (f) 光栅散射谱

Fig. 1. (a) schematic diagram, (c) optical microscope images, and (d) dark field of the  $\text{WS}_2$ -grating coupled system; (b) SEM image, (e) reflection spectrum, (f) scattering spectrum of the grating.

$\text{WS}_2$  中, 基态电子通过吸收一个光子被激发和弛豫, 然后形成的激子的能量与光栅腔模共振, 相比于自由空间, 光栅能够增大量子发射体附近的局域光学态密度, 从而导致量子发射体自发辐射速率变化使其发射过程得到增强.

机械剥离制备的单层  $\text{WS}_2$  转移在  $\text{TiO}_2$  光栅/ $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Au}/\text{SiO}_2/\text{Si}$  结构上, 图 1(b) 为亚波长二氧化钛光栅的 SEM 图像, 图中标度为  $4\ \mu\text{m}$ , 光栅区域用虚线标出, 其长和宽均约  $40\ \mu\text{m}$ . 插图是该光栅的局部放大图, 其中的标度为  $1\ \mu\text{m}$ , 从中可以得到光栅的栅宽为  $128\ \text{nm}$ 、周期为  $510\ \text{nm}$ . 图 1(c) 是样品在显微镜下的图像, 其中虚线区域是单层  $\text{WS}_2$ , 颜色较深的正方形部分是二氧化钛光栅. 图 1(d) 为样品的暗场图像, 蓝色区域对应二氧化钛光栅, 光栅上较亮的部分是单层  $\text{WS}_2$ .

图 1(e) 和图 1(f) 给出了上述光栅对应的实验反射谱和散射谱, 以确认激子发射和光栅共振模式匹配. 本文设计的光栅在  $615\ \text{nm}$  附近存在反射率极小值和散射率极大值. 单层  $\text{WS}_2$  的 PL 谱与所设计的亚波长光栅的散射光谱重叠, 根据 Purcell 效应可知, 当光学微腔频率与发射体共振时, 发射体的自发辐射速率会增大, 这意味着单层  $\text{WS}_2$  的

激子发射与亚波长光栅的共振模式可以发生共振, 使得激子的发射过程得到增强, 增加光致发光强度.

### 3.2 光栅共振器件中的光致发光增强

为了研究单层  $\text{WS}_2$  在亚波长光栅上的光致发光增强, 在室温环境下, 以  $407\ \text{nm}$  相同偏振的激光分别对光栅外和光栅上完整的单层  $\text{WS}_2$  区域进行激发功率依赖的光致发光强度的测量. 首先, 对光栅外的单层  $\text{WS}_2$  进行实验, 图 2(a) 是其激发功率依赖的 PL 图. 随着激发功率的增加, 单层  $\text{WS}_2$  的 PL 强度明显增大, 而光谱形状和峰值位置是固定的, 说明在该激发功率水平下可以合理地忽略热效应. 图 2(b) 给出了光栅上的单层  $\text{WS}_2$  的 PL 强度的功率依赖. 和光栅外的单层  $\text{WS}_2$  一样, 随着激发功率的增加, PL 强度明显增大, 并且光谱形状和峰值位置是固定的, 在相同的激发功率下, 其 PL 强度远高于光栅外的单层  $\text{WS}_2$ .

选取不同功率激光激发下单层  $\text{WS}_2$  的最高 PL 强度, 并对该数据进行拟合, 结果如图 2(c) 所示. 可以看出, 在低激发功率下, 单层  $\text{WS}_2$  的光致发光强度随功率增大有着较大的增强. 随着激发光



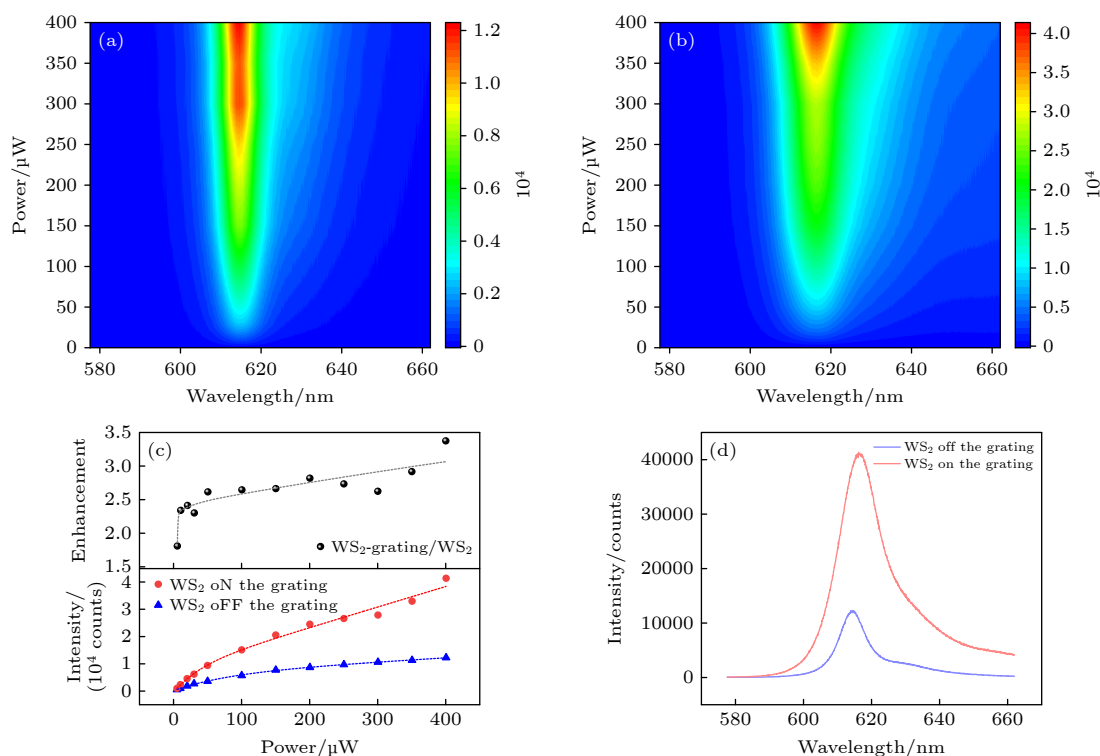


图 2 (a) 光栅外和 (b) 光栅上单层  $\text{WS}_2$  在不同激发功率 PL 光谱; (c) 光栅外和光栅上单层  $\text{WS}_2$  光致发光强度与泵浦功率的关系以及对应的 PL 强度比值; (d) 400  $\mu\text{W}$  泵浦功率下光栅外和光栅上单层  $\text{WS}_2$  PL 光谱

Fig. 2. (a) PL spectra of the  $\text{WS}_2$  monolayer (a) outside the grating and (b) on the grating at different excitation powers; (c) relationship between the  $\text{WS}_2$  photoluminescence intensity and the pump power and the fitting curve; (d) PL spectra of the  $\text{WS}_2$  monolayer at 400  $\mu\text{W}$  pump power.

功率的增大, 光栅外的单层  $\text{WS}_2$  光致发光强度变化趋于平缓, 这表明单层  $\text{WS}_2$  对光的吸收有接近饱和的趋势; 而相同条件下光栅上的单层  $\text{WS}_2$  趋势并不明显, 这一现象从侧面反映出其光致发光过程中一定存在弛豫加速或出现了新的弛豫通道, 使得激子的密度更难以接近阈值. 随着激发光功率的增加, PL 增强的倍率也在不断提高, 并趋于平稳. 结果表明了所设计的结构对单层  $\text{WS}_2$  有着较为稳定的光致发光增强.

在最大激发功率下, 光栅上的单层  $\text{WS}_2$  和光栅外的单层  $\text{WS}_2$  的 PL 谱如图 2(d) 所示, 光栅上的单层  $\text{WS}_2$  相对于光栅外单层  $\text{WS}_2$  的光致发光中心波长有红移, 这是二者所处的介电环境不同导致的<sup>[30,31]</sup>, 在此功率激发光激发下, 光栅上的单层  $\text{WS}_2$  的光致发光强度是光栅外单层  $\text{WS}_2$  光致发光强度的 3.4 倍.

### 3.3 样品的 PL 扫描图与光栅的模拟场分布

为了研究光致发光增强与位置的关系, 测量了

光栅上单层  $\text{WS}_2$  的光致发光图像, 如图 3(a)–(e) 所示. 随着激发功率的提高, 样品对应的 PL 强度也呈线性提高. 光栅上的  $\text{WS}_2$  光致发光强度在样品平面上并不均匀, 不考虑在样品制备过程中造成的单层  $\text{WS}_2$  的裂纹对 PL 扫描图的影响, 可以看到在位于光栅上相对完整的单层  $\text{WS}_2$  区域, PL 强度沿着光栅方向呈周期性起落, 并且这种周期性的光致发光强度分布随着激发功率的增加而越发明显.

利用时域有限差分方法 (finite difference time domain, FDTD) 模拟了亚波长  $\text{TiO}_2$  光栅周围的场分布. 图 3(f) 给出了在中心波长为 615 nm, 光谱宽度为 15 nm 的平面光源下,  $xy$  平面上的场分布. 场分布表明光场在光栅结构中被局部增强. 通过 FDTD 模拟计算得到的光栅反射场分布与样品 PL 强度的分布非常相似. 这表明亚波长二氧化钛光栅对单层  $\text{WS}_2$  光致发光强度有直接的调控, 其共振模式与激子能量的耦合是造成单层  $\text{WS}_2$  光致发光增强的主要因素.

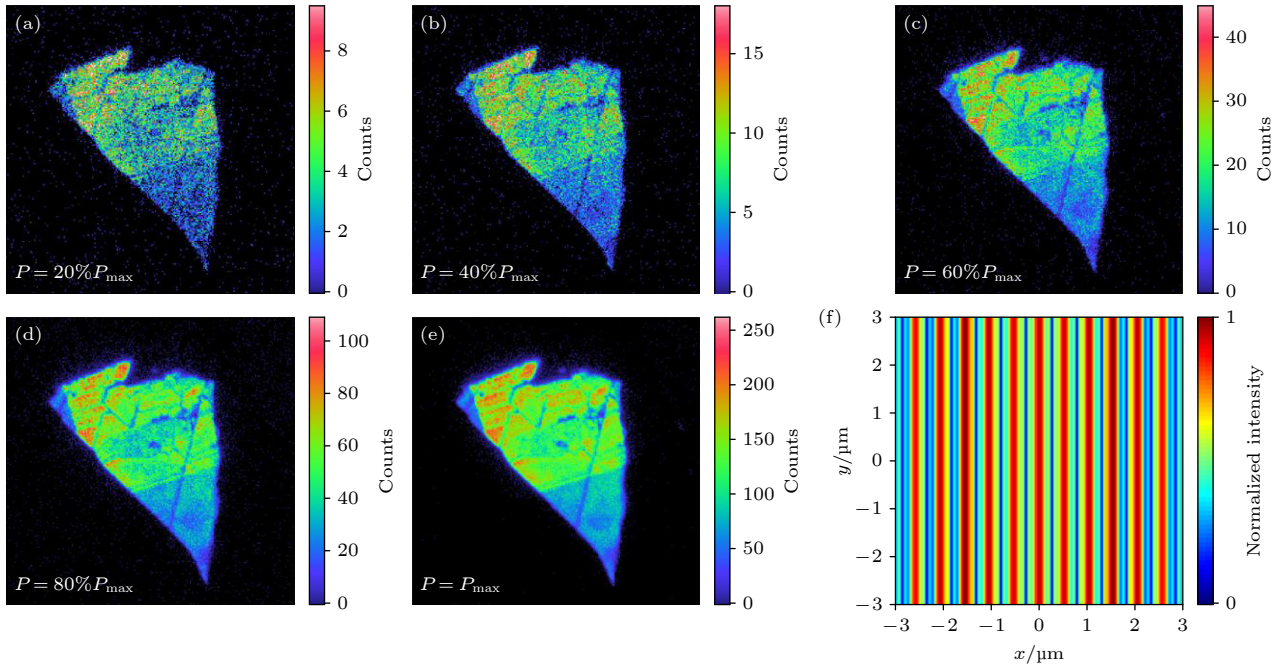


图 3 (a)–(e) 不同激发功率下, 样品上单层  $\text{WS}_2$  光致发光强度扫描图; (f) FDTD 模拟计算的场分布

Fig. 3. (a)–(e) Scanning image of the  $\text{WS}_2$  monolayer's photoluminescence intensity at different excitation power; (f) field distribution of the grating calculated by FDTD simulation.

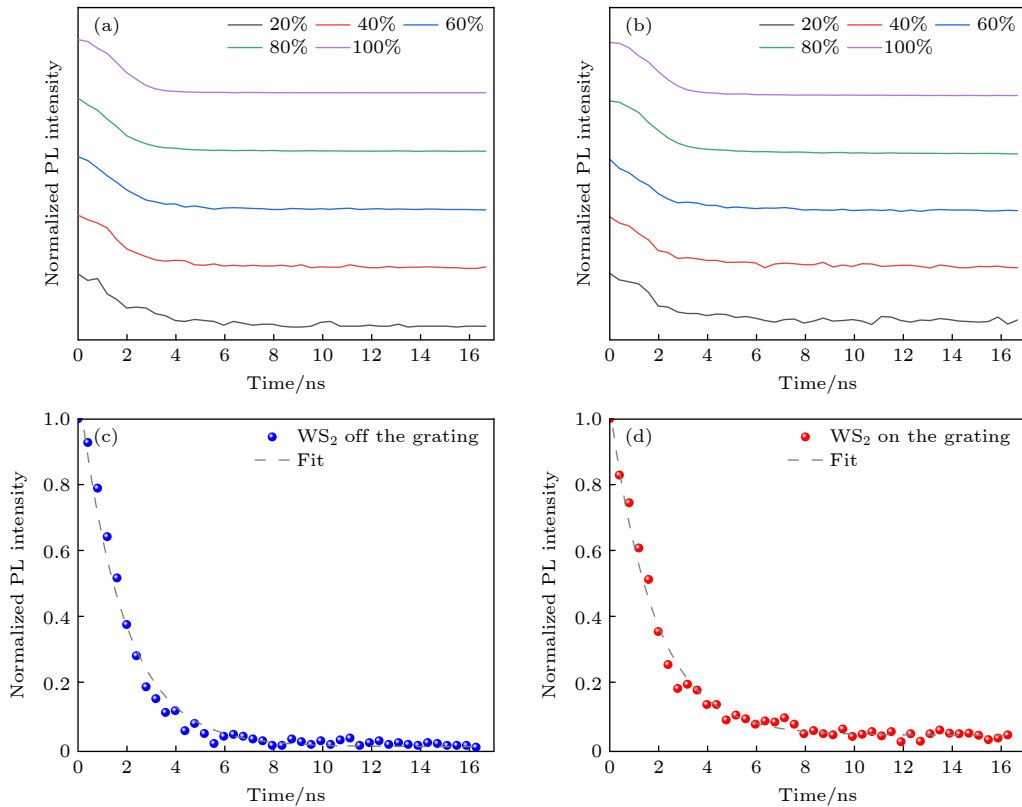


图 4 (a) 光栅外和 (b) 光栅上的单层  $\text{WS}_2$  在最大激发功率 20%–100% 下的时间分辨 PL 谱; (c) 光栅外和 (d) 光栅上单层  $\text{WS}_2$  在 60% 最大激发功率下的荧光寿命及拟合曲线

Fig. 4. Time-resolved PL spectra of the  $\text{WS}_2$  monolayer (a) outside the grating and (b) on the grating at 20%–100% of the maximum excitation power. Fluorescence lifetime and fitting curve of  $\text{WS}_2$  monolayer (c) outside the grating and (d) on the grating at 60% of the maximum excitation power.

### 3.4 器件中单层 WS<sub>2</sub> 的激子动力学

为进一步研究 WS<sub>2</sub> 光致发光增强的机理, 在不同激发功率下, 对样品进行时间分辨的光致发光寿命的测试, 结果如图 4 所示. 图 4(a) 和图 4(b) 分别是不同激发功率下光栅外和光栅上单层 WS<sub>2</sub> 的光致发光强度随时间的变化, 随着激发功率的提高, PL 强度先快速衰减随后缓慢衰减的趋势更加明显. 通过对两组数据弛豫过程的拟合, 发现光栅上的单层 WS<sub>2</sub> 要比光栅外有更短的弛豫时间.

一般来说, 激子主要可以通过辐射复合、激子-激子湮灭、多激子湮灭的方式复合<sup>[32, 33]</sup>, 描述激子弛豫过程的速率方程可以写成

$$\frac{\partial N}{\partial t} = -\alpha N^4 - \beta N^2 - \gamma N, \quad (1)$$

其中  $N$  为激子密度,  $\alpha$  和  $\beta$  分别为双激子-双激子湮灭率和激子-激子湮灭率,  $\gamma$  是单个激子辐射复合率. 当激子受到外部环境的调控, 辐射复合率增加时, 激子发射强度得到增强, 同时由 (1) 式可以看出激子的弛豫过程也会加快.

以 60% 最大激发功率激发下得到的数据为例, 图 4(c) 和图 4(d) 为在 60% 最大激发功率下光栅外单层 WS<sub>2</sub> 和光栅上单层 WS<sub>2</sub> 荧光寿命散点图及其拟合曲线. 通过拟合可以得到光栅外的单层 WS<sub>2</sub> 的弛豫时间为 1.81 ns, 而光栅上单层 WS<sub>2</sub> 的弛豫时间为 1.73 ns, 光栅上单层 WS<sub>2</sub> 的 PL 强度衰减明显快于光栅外单层 WS<sub>2</sub>.

在单层 WS<sub>2</sub> 中, 电子和空穴被泵浦光激发, 随后弛豫为激子. 这些激子要么通过发射光子进行辐射复合, 要么通过多激子湮灭和激子-激子湮灭等多体散射方式进行非辐射耗散<sup>[32, 33]</sup>. 由于单层

WS<sub>2</sub> 的 PL 峰对应的波长在 615 nm, 这与光栅的共振模式强烈耦合, 在 Purcell 效应的作用下, 提高了弛豫过程中辐射复合和非辐射复合的竞争关系, 加快了激子辐射复合的速率, 激子的能量以辐射复合的方式快速释放, 使得单层 WS<sub>2</sub> 的荧光寿命减少, 同时以非辐射方式复合的激子的比例大大降低, 进而增强了 PL 强度.

### 3.5 单层 WSe<sub>2</sub> 的吸收共振 PL 增强

单层 WSe<sub>2</sub> 与所设计的亚波长二氧化钛光栅组合结构的光学显微镜图如图 5(a) 所示, 虚线区域即为 WSe<sub>2</sub> 单层. 分别选择图 5(a) 中 5 个不同的点位研究其 PL 特性, 其中两个点位于光栅上的单层 WSe<sub>2</sub> 上, 两个点位于光栅外的单层 WSe<sub>2</sub> 上, 还有一个点位于没有 WSe<sub>2</sub> 的光栅上. 图 5(b) 给出了在激发功率为 90  $\mu$ W 的 600 nm 激光激发下, 不同位置处的光致发光光谱. 对于相同区域不同位置的 WSe<sub>2</sub> 有着基本相同的 PL 谱, 这表明实验结果是可靠的. 与光栅结构外的单层 WSe<sub>2</sub> 相比, 光栅结构上的单层 WSe<sub>2</sub> 的光致发光强度提升了 1 倍. 为了排除光栅结构对光致发光信号的干扰, 测量了没有单层 WSe<sub>2</sub> 的光栅结构的信号, 如图 5(b) 中紫色曲线所示, 信号在该位置处完全消失, 说明光致发光的信号完全来自于 WSe<sub>2</sub> 单层.

增强薄膜吸收的基本原理是减少薄层的反射和透射, 通常可以通过引入光共振在吸收层产生增强的局部电磁场来实现. 根据耦合模理论 (coupled mode theory, CMT), 与单侧入射波耦合的单个谐振子的演化方程为

$$\frac{da}{dt} = (j\omega_0 - \gamma_0 - \gamma_1 - \gamma_2)a + \kappa_1 s_{1+} + \kappa_2 \cdot 0, \quad (2)$$

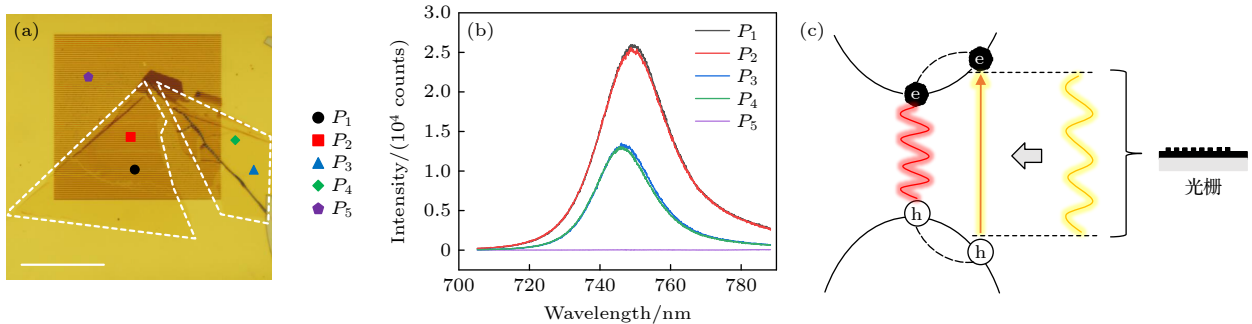


图 5 (a) 光栅上单层 WSe<sub>2</sub> 样品光学显微镜图像以及选取的 5 个测试位置; (b) 样品中 5 个不同位置处 PL 信号; (c) 光栅结构与激发光耦合示意图

Fig. 5. (a) Optical microscope image of the WSe<sub>2</sub> monolayer on the grating and the five test locations selected; (b) PL signals at 5 different locations; (c) schematic diagram of the grating coupled with excitation light.

其中  $\omega_0$  是共振模式的振动频率,  $\gamma_0$  是内部损耗的非辐射衰减率,  $\gamma_1$  和  $\gamma_2$  分别为正向和背向的衰减率,  $s_{1+}$  为入射波,  $s_{1-}$  和  $s_{2-}$  分别为反射波和透射波,  $\kappa_1$  和  $\kappa_2$  为耦合系数. 定义吸收率  $A$  为

$$A = 1 - \left| \frac{s_{1-}}{s_{1+}} \right|^2 - \left| \frac{s_{2-}}{s_{1+}} \right|^2, \quad (3)$$

其中  $s_{1-} = e^{-j\beta d}(-s_{1+} + \kappa_1 a)$  和  $s_{2-} = e^{-j\beta d}\kappa_2 a$  分别为反射波和透射波,  $e^{-j\beta d}$  为薄吸收层中的相移. 求解 (3) 式和 (4) 式可以得到洛伦兹线型吸收为 [34]

$$A = \frac{4\gamma_0\gamma_1}{(\omega - \omega_0)^2 + (\gamma_0 + \gamma_1 + \gamma_2)^2}. \quad (4)$$

由 (4) 式可知, 在共振频率  $\omega_0$  处, 将外部辐射损耗与内部损耗相匹配, 可使吸收达到最大.

在本研究中, WSe<sub>2</sub> 单层的光致发光增强机理与 WS<sub>2</sub> 单层不同, WSe<sub>2</sub> 的激子能量远离光栅结构散射峰对应的波长, 但是由于激发光的波长与光栅的散射峰对应的波长相当, 激发光与二氧化钛光栅共振模式的耦合使得 WSe<sub>2</sub> 单层与激发光相互作用增强 [35], WSe<sub>2</sub> 单层光吸收增强, 从而提高其光致发光强度, 其原理示意图如图 5(c) 所示.

## 4 结 论

综上所述, 本文合理设计了亚波长二氧化钛光栅, 在光栅与单层 TMDCs 的耦合结构中实现了光致发光增强. 当光栅周期为 510 nm, 宽度为 128 nm, 高为 73 nm 时, 单层 WS<sub>2</sub> 的激子能量与光栅的共振模式耦合, 通过 Purcell 效应实现了单层 WS<sub>2</sub> 的光致发光增强, 同时通过激发光波长与光栅谐振模式的耦合, 可以实现单层 WSe<sub>2</sub> 的光致发光增强. 本文的研究结果为介质结构与二维材料复合体系的实际应用提供了一种新方案, 对设计二维材料的高量子效率光电探测器和超薄高效太阳能电池等应用具有重要的指导意义.

感谢北京大学物理学院何霄博士和党郅博博士的讨论与帮助.

## 参考文献

- [1] Splendiani A, Sun L, Zhang Y B, Li T S, Kim J, Chim C Y, Galli G, Wang F 2010 *Nano Lett.* **10** 1271
- [2] Yin Z Y, Li H, Li H, Jiang L, Shi Y M, Sun Y H, Lu G, Zhang Q, Chen X D, Zhang H 2012 *ACS Nano* **6** 74
- [3] Li H, Wu J, Yin Z Y, Zhang H 2014 *Acc. Chem. Res.* **47** 1067
- [4] Zhang Y, Chang T R, Zhou B, Cui Y T, Yan H, Liu Z K, Schmitt F, Lee J, Moore R, Chen Y L, Lin H, Jeng H T, Mo S K, Hussain Z, Bansil A, Shen Z X 2014 *Nat. Nanotechnol.* **9** 111
- [5] He K L, Kumar N, Zhao L, Wang Z F, Mak K F, Zhao H, Shan J 2014 *Phys. Rev. Lett.* **113** 026803
- [6] Kormányos A, Zólyomi V, Drummond N D, Rakytá P, Burkard G, Fal'ko V I 2013 *Phys. Rev. B* **88** 045416
- [7] Zhang Y J, Oka T, Suzuki R, Ye J T, Iwasa Y 2014 *Science* **344** 725
- [8] Morpurgo A F 2013 *Nat. Phys.* **9** 532
- [9] Jones A M, Yu H Y, Ghimire N J, Wu S F, Aivazian G, Ross J S, Zhao B, Yan J Q, Mandrus D G, Xiao D, Yao W, Xu X D 2013 *Nat. Nanotechnol.* **8** 634
- [10] Yuan H T, Bahramy M S, Morimoto K, Wu S F, Nomura K, Yang B J, Shimotani H, Suzuki R, Toh M, Kloc C, Xu X D, Arita R, Nagaosa N, Iwasa Y 2013 *Nat. Phys.* **9** 563
- [11] Wang Q H, Kalantar-Zadeh K, Kis A, Coleman J N, Strano M S 2012 *Nat. Nanotechnol.* **7** 699
- [12] Mak K F, Lee C, Hone J, Shan J, Heinz T F 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 136805
- [13] Wang Z F, Jie S, Mak K F 2016 *Nat. Nanotechnol.* **12** 144
- [14] Schaibley J R, Rivera P, Yu H Y, Seyler K L, Yan J Q, Mandrus D G, Taniguchi T, Watanabe K, Yao W, Xu X D 2016 *Nat. Commun.* **7** 13747
- [15] Xu Z Q, Zhang Y P, Wang Z Y, Shen Y T, Huang W C, Xia X, Yu W Z, Xue Y S, Sun L T, Zheng C X, Lu Y R, Liao L, Bao Q L 2016 *2 D Mater.* **3** 041001
- [16] Li P, Yuan K, Lin D Y, Xu X L, Wang Y L, Wan Y, Yu H R, Zhang K, Ye Y, Dai L 2017 *Nanoscale* **10** 1039
- [17] Ross J S, Klement P, Jones A M, Ghimire N J, Yan J Q, Mandrus D G, Taniguchi T, Watanabe K, Yao W, Cobden D H, Xu X D 2014 *Nat. Nanotechnol.* **9** 268
- [18] Wu S F, Buckley S, Schaibley J R, Feng L F, Yan J Q, Mandrus D G, Hatami F, Yao W, Vučković J, Majumdar A, Xu X D 2015 *Nature* **520** 69
- [19] Piper J R, Fan S 2016 *ACS Photonics* **3** 571
- [20] Butun S, Tongay S, Aydin K 2015 *Nano Lett.* **15** 2700
- [21] Galfsky T, Sun Z, Considine C R, Chou C T, Ko W C, Lee Y H, Narimanov E E, Menon V M 2016 *Nano Lett.* **16** 4940
- [22] Chen H T, Yang J, Rusak E, Straubel J, Guo R, Myint Y W, Pei J J, Decker M, Staude I, Rockstuhl C, Lu Y R, Kivshar Y S, Neshev D 2016 *Sci. Rep.* **6** 22296
- [23] Su M Y, Mirin R P 2006 *Appl. Phys. Lett.* **89** 033105
- [24] Tran T T, Wang D, Xu Z Q, Yang A, Toth M, Odom T W, Aharonovich I 2017 *Nano Lett.* **17** 2634
- [25] Sun S B, Dang J C, Xie X, Yu Y, Yang L L, Xiao S, Wu S Y, Peng K, Song F L, Wang Y N, Yang J N, Qian C J, Zuo Z C, Xu X L 2020 *Chin. Phys. Lett.* **37** 087801
- [26] Qian D D, Liu L, Xing Z X, Dong R, Wu L, Cai H K, Kong Y F, Zhang Y, Xu J J 2021 *Chin. Phys. Lett.* **38** 087801
- [27] Tongay S, Fan W, Kang J, Park J, Koldemir U, Suh J, Narang D S, Liu K, Ji J, Li J B, Sinclair R, Wu J Q 2014 *Nano Lett.* **14** 3185
- [28] Gan X T, Gao Y D, Mak K F, Yao X W, Shiue R J, Zande A V D, Trusheim M E, Hatami F, Heinz T F, Hone J, Englund D 2013 *Appl. Phys. Lett.* **103** 699
- [29] Guo R, Kinzel E C, Li Y, Uppuluri S M, Raman A, Xu X F 2010 *Opt. Express* **18** 4961
- [30] Goodman A J, Lien D H, Ahn G H, Spiegel L L, Amani M, Willard A P, Javey A, Tisdale W A 2020 *J. Phys. Chem. C* **124** 12175



- [31] Drüppel M, Deilmann T, Krüger P, Rohlfing M 2017 *Nat. Commun.* **8** 2117
- [32] Shan H Y, Yu Y, Zhang R, Cheng R T, Zhang D, Luo Y, Wang X L, Li B W, Zu S, Lin F, Liu Z, Chang K, Fang Z Y 2019 *Mater. Today* **24** 10
- [33] Qi P F, Luo Y, Li W, Cheng Y, Shan H Y, Wang X L, Liu Z, Ajayan P M, Lou J, Hou Y L, Liu K H, Fang Z Y 2020 *ACS Nano* **14** 6897
- [34] Li Q, Lu J, Gupta P, Qiu M 2019 *Adv. Opt. Mater.* **7** 1900595
- [35] Duong N M H, Xu Z Q, Kianinia M, Su R, Liu Z, Kim S, Bradac C, Tran T T, Wan Y, Li L J, Solntsev A, Liu J, Aharonovich I 2018 *ACS Photonics* **5** 3950

# Enhancement of photoluminescence of monolayer transition metal dichalcogenide by subwavelength $\text{TiO}_2$ grating<sup>\*</sup>

Tao Guang-Yi<sup>1)2)</sup> Qi Peng-Fei<sup>3)</sup> Dai Yu-Chen<sup>1)</sup> Shi Bei-Bei<sup>1)</sup>  
Huang Yi-Jing<sup>1)</sup> Zhang Tian-Hao<sup>2)</sup> Fang Zhe-Yu<sup>1)†</sup>

1) (School of Physics, State Key Laboratory for Artificial Microstructure and Mesoscopic Physics,  
Peking University, Beijing 100871, China)

2) (Tianjin Key Laboratory of Photonics Materials and Technology for Information Science, Key Laboratory of Weak-Light Nonlinear  
Photonics, Ministry of Education, Photonics Research Center, School of Physics, Nankai University, Tianjin 300071, China)

3) (Tianjin Key Laboratory of Micro-scale Optical Information Science and Technology,  
Institute of Modern Optics, Nankai University, Tianjin 300350, China)

( Received 21 December 2021; revised manuscript received 28 December 2021 )

## Abstract

Transition metal dichalcogenide (TMDC) monolayers have direct band gaps and can produce strong photoluminescence(PL), thereby possessing a wide application prospect in photoelectric devices and photoelectric detection fields. However, their PL efficiency needs further improving because they are of atomic thickness only, besides, they have non-radiative recombination of excitons. In this study, a combination structure of a gold film, titanium dioxide subwavelength gratings and TMDC monolayers is designed, which can greatly improve PL efficiency of the TMDC monolayers. The spontaneous emission rate can be controlled by the Purcell effect, and the maximum enhancement of photoluminescence is as high as 3.4 times. In this paper, the PL signals of monolayer  $\text{WS}_2$  and monolayer  $\text{WSe}_2$  on the designed structure are studied. The feasibility of the enhancement of PL of the TMDC monolayers on the subwavelength grating structure is verified experimentally, which provides a new idea for the application of two-dimensional materials to optoelectronic devices.

**Keywords:** transition metal dichalcogenides, subwavelength grating, photoluminescence, Purcell effect

**PACS:** 78.40.Fy, 78.55.-m, 78.66.-w, 78.70.-g

**DOI:** 10.7498/aps.71.20212358

\* Project supported by the National Key R&D Program of China (Grant No. 2017YFA0206000), the Natural Science Foundation of Beijing, China (Grant No. Z180011), and the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 12027807, 61521004).

† Corresponding author. E-mail: [zhyfang@pku.edu.cn](mailto:zhyfang@pku.edu.cn)