

# 基于 VO<sub>2</sub> 和石墨烯实现 hBN 声子极化激元和自发发射率的主动调谐\*

周昆<sup>1)†</sup> 马豪悦<sup>1)</sup> 孙希贤<sup>1)</sup> 吴小虎<sup>2)‡</sup>

1) (中国矿业大学安全工程学院, 徐州 221116)

2) (山东高等技术研究院, 济南 250100)

(2022 年 11 月 12 日收到; 2022 年 12 月 31 日收到修改稿)

鉴于极化激元对介电环境异常敏感的特性, 本文中提出了双曲材料六方氮化硼 (hBN) 和石墨烯与相变材料二氧化钒 (VO<sub>2</sub>) 组成的异质结构, 用来研究 hBN 声子极化激元 (PhPs) 的主动可调谐性. 研究表明, 通过控制 hBN/VO<sub>2</sub> 异质结构中 VO<sub>2</sub> 相变可实现对 hBN PhPs 的主动调谐, 获得主动可调谐的自发发射 (SE) 率. 当在 hBN/VO<sub>2</sub> 异质结构中添加石墨烯时, 会在 hBN 双曲线带内耦合产生双曲等离激元-声子极化激元 (HPPPs), 而在双曲线带外产生表面等离激元-声子极化激元 (SPPPs), 通过控制 VO<sub>2</sub> 相态和调节石墨烯化学势亦可实现石墨烯/hBN/VO<sub>2</sub> 异质结构的耦合色散及 SE 率的主动调谐. 该研究为使用诸如相变材料和石墨烯等功能材料调谐各向异性光学材料与光的相互作用机制提供了理论指导.

**关键词:** 各向异性光学材料, 相变材料, 石墨烯, 声子极化激元, 自发发射率

**PACS:** 42.25.Bs, 41.20.Jb, 78.20.Ci, 71.38.-k

**DOI:** 10.7498/aps.72.20222167

## 1 引言

双曲线材料 (HMs) 因具有各向异性而在纳米光子领域引起了极大的兴趣<sup>[1-3]</sup>. hBN 作为一种天然的 HMs, 因在中红外光谱范围内支持声子极化激元 (PhPs), 已经在自发发射 (SE) 增强、近场辐射传热和折射率传感<sup>[4-7]</sup> 等领域得到了应用. 然而, 由于固有晶格导致的低效可调谐性, hBN PhPs 的可调谐性仍然是一个值得研究的课题<sup>[8]</sup>.

过去的研究表明将不同功能材料堆叠组合成异质结构, 为通过耦合作用调谐材料特性并揭示其潜在物理机制提供了灵活方法<sup>[9]</sup>. 由于石墨烯在红外和太赫兹光谱范围内支持可调谐的表面等离激元

体极化激元 (SPPs), 且石墨烯可以灵活地与其他 HMs 或微纳结构结合, 为实现光电器件的可调谐性提供了可能<sup>[10,11]</sup>, 石墨烯已经被用于实现可调谐的 PhPs 色散模式、近场辐射传热和光谱吸收. 除石墨烯外, 包括二氧化钒 (VO<sub>2</sub>) 和 Ge<sub>2</sub>Sb<sub>2</sub>Te<sub>5</sub> 在内的相变材料因具有的独特光学特性, 在加热或脉冲激光刺激时会发生从绝缘态到金属态的相变, 其在实现主动可调谐的光-物质相互作用方面取得了丰硕的成果<sup>[4,9,12-14]</sup>. 相比于 Ge<sub>2</sub>Sb<sub>2</sub>Te<sub>5</sub> 可以在 438 K 发生相变, VO<sub>2</sub> 的相变温度仅为 340 K, 因此 VO<sub>2</sub> 在发生相变过程中对其他复合材料的影响相对较小<sup>[12,15,16]</sup>. 此外, VO<sub>2</sub> 的相变温度可通过掺杂 W, Ti, Mg 或 Al 等金属纳米颗粒 ( $M_xV_{1-x}O_2$ ) 进行调节<sup>[15,17]</sup>, 例如通过将  $W_xV_{1-x}O_2$  中的  $x$  设置为 1.5%,

\* 国家自然科学基金 (批准号: 52204258)、中央高校基本科研业务费专项资金 (批准号: 2022QN1017)、新疆维吾尔自治区重点研发任务专项 (批准号: 2022B03003-3) 和山东省自然科学基金 (批准号: ZR2022YQ57) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: zhoukun0209@163.com

‡ 通信作者. E-mail: xiaohu.wu@iat.cn

就可以将 VO<sub>2</sub> 从绝缘态 VO<sub>2</sub>(I) 到金属态 VO<sub>2</sub>(M) 的相变温度降低至 295 K<sup>[18]</sup>. 基于 VO<sub>2</sub> 的低相变温度以及可通过掺杂金属纳米粒子调节相变温度的优势, VO<sub>2</sub> 已经在温度自适应辐射涂层、能量存储和可重构电子设备中得到广泛应用<sup>[19–21]</sup>.

在本文中, 借助 VO<sub>2</sub> 从绝缘态相变到金属态时光学特性的差异以及石墨烯中可调谐的 SPPs, 研究了 hBN PhPs 的主动可调谐性, 同时分析了基于 hBN 的异质结构中主动可调谐的 SE 率. VO<sub>2</sub> 与 hBN 的结合思路为纳米光子学设计提供了一个全新的工具集, 该研究为实现自然或人工双曲材料与光的相互作用机制提供了理论指导.

## 2 结构模型和数值计算方法

如图 1(a), 为了实现 hBN PhPs 的主动调谐, 提出了由相变材料 VO<sub>2</sub> 和 hBN 组成的异质结构. 基于 VO<sub>2</sub> 温度调谐的相变特性, 选择 VO<sub>2</sub> 作为基底材料, 其折射系数  $n$  和消光系数  $k$  如图 1(b)<sup>[15]</sup>, 为保证 VO<sub>2</sub> 作为基底时无透射, 应使得 VO<sub>2</sub> 的厚度大于 5  $\mu\text{m}$ , 在本文中取值为 10  $\mu\text{m}$ . hBN 具有两种与双曲率相关的声子模式, 形成两种截然不同的双曲线带, 即位于低频波段 I 型双曲线带 ( $\varepsilon_{\parallel} < 0$ ,  $\varepsilon_{\perp} > 0$ ) 和位于高频波段 II 型双曲线带 ( $\varepsilon_{\parallel} > 0$ ,  $\varepsilon_{\perp} < 0$ ). hBN 的介电函数可以表示为<sup>[4,22]</sup>

$$\varepsilon_{\text{hBN},l} = \varepsilon_{\infty,l} \left[ 1 + \frac{(\omega_{\text{LO},l})^2 - (\omega_{\text{TO},l})^2}{(\omega_{\text{TO},l})^2 - \omega^2 - i\omega\Gamma_l} \right], \quad (1)$$

其中  $l = \perp$  和  $\parallel$  分别表示垂直于光轴所在平面和平行于光轴所在的平面;  $\varepsilon_{\infty}$  和  $\Gamma$  分别代表高频介电常数和阻尼常数;  $\omega_{\text{LO}}$  和  $\omega_{\text{TO}}$  分别表示纵向和横向光学声子的共振频率. 对于垂直于光轴所在的平

面:  $\varepsilon_{\infty,\perp} = 4.87$ ,  $\omega_{\text{LO},\perp} = 1610 \text{ cm}^{-1}$ ,  $\omega_{\text{TO},\perp} = 1370 \text{ cm}^{-1}$ ,  $\Gamma_{\perp} = 5 \text{ cm}^{-1}$ ; 而对于平行于光轴所在的平面:  $\varepsilon_{\infty,\parallel} = 2.95$ ,  $\omega_{\text{LO},\parallel} = 830 \text{ cm}^{-1}$ ,  $\omega_{\text{TO},\parallel} = 780 \text{ cm}^{-1}$ ,  $\Gamma_{\parallel} = 4 \text{ cm}^{-1}$ . 图 1(c) 给出了 hBN 介电常数分量的实部, 可以发现在 780—830  $\text{cm}^{-1}$  和 1370—1610  $\text{cm}^{-1}$  存在两个双曲线带.

除利用 VO<sub>2</sub> 实现 hBN PhPs 的主动调谐之外, 由于石墨烯在中红外光谱范围内支持可调谐的 SPPs, 本研究在 hBN 层的顶部添加石墨烯层以研究利用 SPPs 来实现 hBN PhPs 的主动调谐<sup>[11]</sup>. 石墨烯在中红外光谱范围内的介电函数可表示为  $\varepsilon_g = 1 + i\sigma_g/(\omega\varepsilon_0t_g)$ , 其中  $\varepsilon_0 = 8.854187817 \times 10^{-12} \text{ F/m}$  为真空中的介电常数,  $t_g = 0.34 \text{ nm}$  为石墨烯厚度,  $\sigma_g$  表示石墨烯的表面电导率, 可以通过带间  $\sigma_{\text{intra}}$  和带内  $\sigma_{\text{inter}}$  之和得到<sup>[23]</sup>:

$$\begin{aligned} \sigma_g = \sigma_{\text{intra}} + \sigma_{\text{inter}} = & \frac{i}{\omega + i/\tau_g} \frac{2e^2k_B T}{\pi\hbar^2} \ln \left[ 2 \cos \left( \frac{\mu_g}{2k_B T} \right) \right] \\ & + \frac{e^2}{4\hbar} \left[ G \left( \frac{\hbar\omega}{2} \right) + \frac{4i\hbar\omega}{\pi} \int_0^{\infty} \frac{G(\xi) - G(\hbar\omega/2)}{(\hbar\omega)^2 - 4\xi^2} d\xi \right], \end{aligned} \quad (2)$$

其中  $G(\xi) = \frac{\sinh(\xi/k_B T)}{\cosh(\mu_g/k_B T) + \cosh(\xi/k_B T)}$ ;  $e$  为单位电荷;  $\hbar$  为截断 Planck 常数;  $k_B$  为 Boltzmann 常数;  $T$  为温度;  $\xi$  为电子频谱带;  $\tau_g$  和  $\mu_g$  分别为石墨烯弛豫时间和化学势. 这里  $e = 1.602176462 \times 10^{-19} \text{ C}$ ,  $\hbar = 1.054571596 \times 10^{-34} \text{ J}\cdot\text{s}$ ,  $k_B = 1.380649 \times 10^{-23} \text{ J/K}$ ,  $T = 300 \text{ K}$ ,  $\tau_g = 10^{-13} \text{ s}$ .

为了研究上述异质结构中的潜在物理机制, 这里用 p 偏振下异质结构的总 Fresnel 反射系数的虚部  $\text{Im}(r^p)$  来表示色散关系. 石墨烯/hBN/VO<sub>2</sub> 异

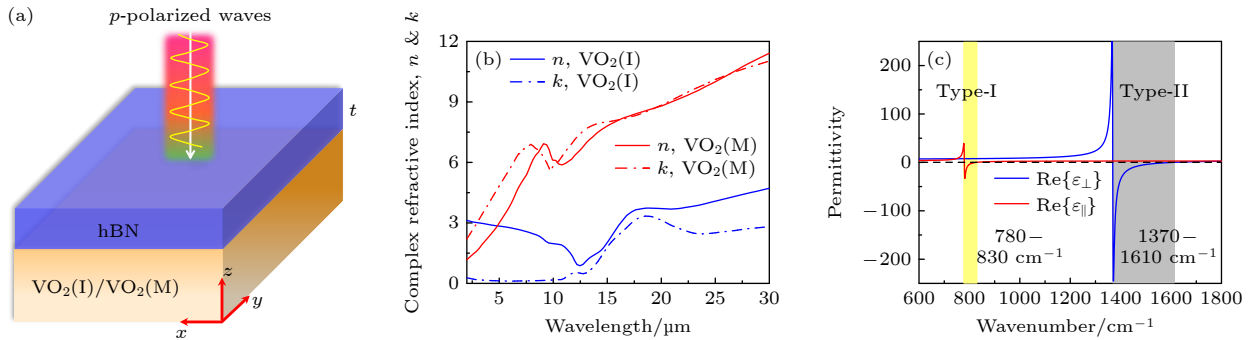


图 1 (a) hBN/VO<sub>2</sub> 异质结构示意图,  $t$  代表 hBN 的厚度; (b) VO<sub>2</sub> 的折射系数  $n$  和消光系数  $k$ <sup>[15]</sup>; (c) hBN 介电常数张量分量的实部  
Fig. 1. (a) Schematic diagram of the hBN/VO<sub>2</sub> heterostructure,  $t$  represents the hBN thickness; (b) the refractive index  $n$  and extinction coefficient  $k$  of VO<sub>2</sub><sup>[15]</sup>; (c) real parts of the permittivity tensor components of hBN.

质结构的总 Fresnel 反射系数可表示为<sup>[24]</sup>

$$r^p = \frac{r_{12}^p + r_{234}^p e^{2ik_{2z}^p t_g}}{1 + r_{12}^p r_{234}^p e^{2ik_{2z}^p t_g}}. \quad (3)$$

这里  $r_{mn}$  表示从介质  $m$  到介质  $n$  的 Fresnel 反射系数, 其中

$$\begin{aligned} r_{12}^p &= (k_{1z}^p \varepsilon_g - k_{2z}^p \varepsilon_1) / (k_{1z}^p \varepsilon_g + k_{2z}^p \varepsilon_1), \\ r_{23}^p &= (k_{2z}^p \varepsilon_{\text{hBN},\perp} - k_{3z}^p \varepsilon_g) / (k_{2z}^p \varepsilon_{\text{hBN},\perp} + k_{3z}^p \varepsilon_g), \\ r_{34}^p &= (k_{3z}^p \varepsilon_4 - k_{4z}^p \varepsilon_{\text{hBN},\perp}) / (k_{3z}^p \varepsilon_4 + k_{4z}^p \varepsilon_{\text{hBN},\perp}), \\ r_{234}^p &= (r_{23}^p + r_{34}^p e^{2ik_{3z}^p t_{\text{hBN}}}) / (1 + r_{23}^p r_{34}^p e^{2ik_{3z}^p t_{\text{hBN}}}), \end{aligned}$$

其中  $k_{az}^p = \sqrt{\varepsilon_a k_0^2 - k_x^2}$  ( $a = 1, 2$  和  $4$  分别代表空气、石墨烯和  $\text{VO}_2$ ),

$$k_{3z}^p = \sqrt{\varepsilon_{\text{hBN},\perp} k_0^2 - \varepsilon_{\text{hBN},\perp} k_x^2 / \varepsilon_{\text{hBN},\parallel}}, \quad k_0 = \omega / c$$

值得注意的是当  $t_g = 0$  nm 时, (3) 式代表 hBN/ $\text{VO}_2$  异质结构的 Fresnel 反射系数.

### 3 分析与讨论

#### 3.1 hBN/ $\text{VO}_2$ 异质结构的 PhPs 色散

图 2(a) 和图 2(b) 分别给出了 hBN/ $\text{VO}_2$ (I) 和 hBN/ $\text{VO}_2$ (M) 异质结构的 PhPs 色散分布. 研究结果表明 hBN/ $\text{VO}_2$  异质结构的 PhPs 色散主要分布在 hBN 的 I 型和 II 型双曲线带内, hBN 中量化的 PhPs 色散分支对应于  $\text{HP}^2$  波导模式, 且每条 PhPs 色散分支均分布于  $\omega_{\text{TO}}$  到  $\omega_{\text{LO}}$  之间<sup>[22,25]</sup>. 位于 I 型和 II 型双曲线带内的 PhPs 色散分支在小  $k_x/k_0$  范围内分别呈单调减少和单调递增的趋势, 而当继续增大  $k_x/k_0$  时位于 I 型和 II 型双曲线带内的

PhPs 色散分支则分别无限趋近于  $\omega_{\text{TO},\parallel}$  和  $\omega_{\text{LO},\perp}$ . 位于 I 型双曲线带内的 PhPs 色散分支具有负的群速度 ( $v_g = d\omega/dk < 0$ ), 而位于 II 型双曲线带内的 PhPs 色散分支则具有正的群速度 ( $v_g > 0$ ), 这证明了在实验中观察到的双曲材料所具有的异常反射现象<sup>[26]</sup>. 此外, 为进一步解释 hBN/ $\text{VO}_2$  异质结构的色散模式, 基于准静态近似方法给出了 hBN/ $\text{VO}_2$  异质结构在双曲线带内的色散关系式<sup>[22,27]</sup>:

$$\begin{aligned} q &= -\frac{\varphi}{t} \left[ \tan^{-1} \left( \frac{\varepsilon_1}{\varepsilon_{\text{hBN},\perp} \varphi} \right) \right. \\ &\quad \left. + \tan^{-1} \left( \frac{\varepsilon_{\text{VO}_2}}{\varepsilon_{\text{hBN},\perp} \varphi} \right) + m\pi \right], \\ m &= 0, 1, 2, \dots, \end{aligned} \quad (4)$$

其中  $q = k_\rho / k_0$  是归一化的面内动量,  $k_\rho^2 = k_x^2 + k_y^2$ ;  $\varphi = \pm \sqrt{\varepsilon_{\text{hBN},\parallel} / \varepsilon_{\text{hBN},\perp} / i}$ ;  $\varepsilon_1$  和  $\varepsilon_{\text{VO}_2}$  分别代表空气和  $\text{VO}_2$  的介电函数;  $t$  代表 hBN 的厚度;  $m = 0, 1, 2, \dots$  代表 hBN PhPs 的色散分支. 基于上述色散关系式, 计算了 hBN/ $\text{VO}_2$  异质结构在 I 型和 II 型双曲线带内的部分 PhPs 色散分支, 如图 2(a) 和图 2(b) 中的白色圆圈所示, 可以发现利用色散关系和 Fresnel 反射系数虚部计算出来的色散吻合很好, 验证了利用 hBN/ $\text{VO}_2$  异质结构的总 Fresnel 反射系数虚部  $\text{Im}(r^p)$  计算色散模式的正确性. 同时, 从 (4) 式中看出, hBN/ $\text{VO}_2$  异质结构的 PhPs 色散主要和 hBN 的厚度、hBN 以及  $\text{VO}_2$  的介电函数有关.

当 hBN/ $\text{VO}_2$  异质结构中  $\text{VO}_2$  基底从  $\text{VO}_2$ (I) 相变到  $\text{VO}_2$ (M) 时, 会使得其 PhPs 色散分支在其双曲线带内出现不同的位移现象. 为进一步说明

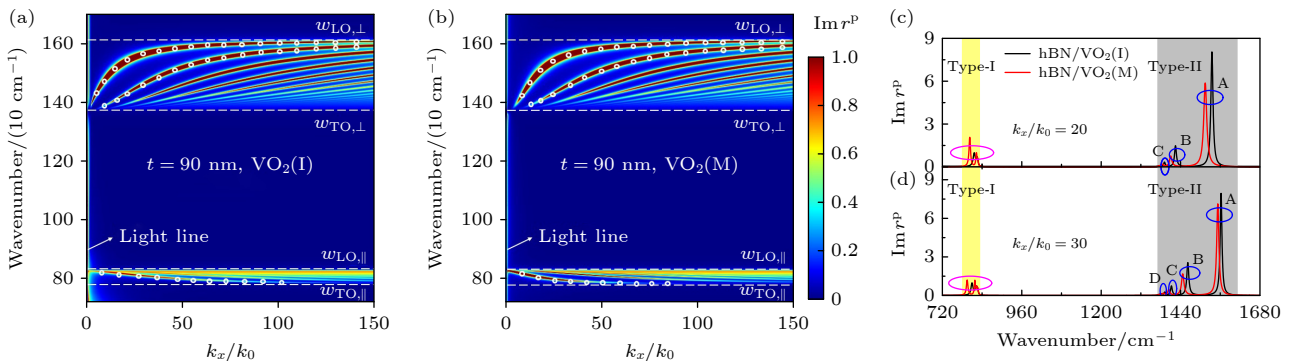


图 2 (a) hBN/ $\text{VO}_2$ (I) 和 (b) hBN/ $\text{VO}_2$ (M) 异质结构的 PhPs 色散分布, 其中白色圆圈代表利用 (4) 式计算得到的色散分支; hBN/ $\text{VO}_2$  异质结构在 (c)  $k_x/k_0 = 20$  和 (d)  $k_x/k_0 = 30$  的 PhPs 色散曲线

Fig. 2. (a) Hybrid PhPs dispersion of hBN/ $\text{VO}_2$ (I) and (b) hBN/ $\text{VO}_2$ (M) heterostructures, the white circles represent the dispersion branches calculated by Eq. (4); Dispersion curves of hBN/ $\text{VO}_2$  heterostructures at (c)  $k_x/k_0 = 20$  and (d)  $k_x/k_0 = 30$ .



VO<sub>2</sub> 相变引起 hBN/VO<sub>2</sub> 异质结构 PhPs 色散的差异, 图 2(c) 和图 2(d) 给出了 hBN/VO<sub>2</sub>(I) 和 hBN/VO<sub>2</sub>(M) 异质结构在  $k_x/k_0 = 20$  和  $k_x/k_0 = 30$  的 PhPs 色散曲线. 可以发现在  $k_x/k_0 = 20$  ( $k_x/k_0 = 30$ ) 时, hBN/VO<sub>2</sub>(I) 和 hBN/VO<sub>2</sub>(M) 异质结构在 II 型双曲线带内的 PhPs 色散分支均发生红移现象. 对于在  $k_x/k_0 = 20$  ( $k_x/k_0 = 30$ ) 的 A 分支, hBN/VO<sub>2</sub>(I) 异质结构的 PhPs 色散出现在  $1534.4 \text{ cm}^{-1}$  ( $1562.1 \text{ cm}^{-1}$ ), 对应的  $\text{Im}(r^p) = 8.13$  ( $\text{Im}(r^p) = 7.98$ ); 作为对比, hBN/VO<sub>2</sub>(M) 异质结构的 PhPs 色散出现在  $1514.5 \text{ cm}^{-1}$  ( $1553.3 \text{ cm}^{-1}$ ), 对应的  $\text{Im}(r^p) = 5.93$  ( $\text{Im}(r^p) = 7.12$ ). 随着 VO<sub>2</sub> 相变的发生, 由于 PhPs 色散分支发生位移, hBN/VO<sub>2</sub>(M) 异质结构在 I 型双曲线带内的 PhPs 色散分支会从一条转变为两条. hBN/VO<sub>2</sub> 异质结构 PhPs 色散的变化主要是由于 VO<sub>2</sub> 基底从 VO<sub>2</sub>(I) 相变到 VO<sub>2</sub>(M) 时 VO<sub>2</sub> 介电函数发生变化<sup>[15]</sup>, 引起异质结构总 Fresnel 反射系数的变化进而影响  $\text{Im}(r^p)$ , 最终造成 hBN/VO<sub>2</sub> 异质结构 PhPs 色散的变化; 同时, 从 (4) 式中亦可以发现在保持 hBN/VO<sub>2</sub> 异质结构中 hBN 参量不变的条件下,  $\epsilon_{\text{VO}_2}$  的变化最终会导致整个色散关系的变化. 上述研究为主动调谐 hBN PhPs 色散提供了新思路, 相比于利用 Ge<sub>2</sub>Sb<sub>2</sub>Te<sub>5</sub> 主动调谐 hBN PhPs 色散而言, 由于 VO<sub>2</sub> 更低的相变温度在实际操作中更具有优势<sup>[4]</sup>.

### 3.2 石墨烯 SPPs 参与的 hBN/VO<sub>2</sub> 异质结构的耦合色散

hBN PhPs 和石墨烯可调谐的 SPPs 均位于中红外区域, 图 3 给出了石墨烯/hBN/VO<sub>2</sub> 异质结构中 hBN PhPs 与石墨烯 SPPs 之间的耦合色散分布. 研究结果表明在 hBN 的 I 型和 II 型双曲线带内存在由石墨烯 SP<sup>2</sup> 波导模式和 hBN HP<sup>2</sup> 波导模式耦合产生的 HPPPs<sup>[28]</sup>, HPPPs 保留了 hBN 的双曲型波导模式特性, 且在 I 型 (II 型) 双曲线带内  $v_g < 0$  ( $v_g > 0$ ). 而在 hBN 的双曲线带外耦合产生 SPPs, 其在石墨烯界面形成强局域场<sup>[28]</sup>, 且保留了石墨烯的 SPPs 特性且具有  $v_g > 0$ . 此外, 当石墨烯/hBN/VO<sub>2</sub> 异质结构中的 VO<sub>2</sub> 基底经历从 VO<sub>2</sub>(I) 到 VO<sub>2</sub>(M) 的相变时, 其耦合色散分支逐渐向远离光线的方向移动, 同时 hBN/VO<sub>2</sub>(M) 异质结构在 I 型双曲线带内的 PhPs 色散分支会从一条转变为两条.

### 3.3 基于 VO<sub>2</sub> 和石墨烯参与的可调谐 SE 增强

上述异质结构可实现 hBN PhPs 色散的主动调谐, 接下来将分析上述异质结构是否可实现 SE 率的主动调谐. 与自由空间中的受激量子发射器相比, 当受激量子发射器被放置在接近支持特殊模式的系统附近时其寿命可被修改, 这种现象被称为 Purcell 效应, 一般用 SE 率来表征, SE 率强度与局域态密度有关, 双曲材料的局域态密度调制导致了近场和远场辐射的变化<sup>[29,30]</sup>. SE(Purcell 光谱) 率可表示为<sup>[31,32]</sup>

$$\frac{\Gamma}{\Gamma_0} = 1 + \frac{3}{2k_0^3} \int_0^\infty dk_x k_x \text{Re} \left( \frac{k_x^2 e^{2ik_z d_s} r^p(\omega, k_x)}{k_z} \right). \quad (5)$$

这里  $\Gamma_0 = \omega_0^3 |p_z|^2 / (3\pi\epsilon_0 \hbar c^3)$  为自由空间中偶极子的 SE 率,  $d_s$  为偶极子发射器与所提异质结构之间的距离,  $r^p(\omega, k_x)$  为所述异质结构的总 Fresnel 反射系数.

为研究上述异质结构的 SE 率, 这里假设  $d_s = 100 \text{ nm}$ , 值得注意的是偶极子发射器与所提系统之间的距离  $d_s$  越小, SE 率越大<sup>[4,22,33]</sup>. 图 4(a) 和图 4(b) 分别给出了 hBN/VO<sub>2</sub> 异质结构在 I 和 II 型双曲线带的 SE 率随 hBN 厚度的变化规律. 研究结果表明对于 hBN/VO<sub>2</sub> 异质结构, 相较于双曲线带外的 SE 率, 在 I 型和 II 型双曲线带内由于 hBN PhPs 贡献使得其 SE 率明显增强. 随着 hBN/VO<sub>2</sub> 异质结构中 hBN 厚度从  $t = 60 \text{ nm}$  增加到  $t = 120 \text{ nm}$ , 其 SE 率增强的波数范围逐渐增大, 这归因于 hBN 厚度增加会使得 hBN 双曲线带内更多的 PhPs 分支会显现出来<sup>[4,22,33]</sup>, 进而造成对  $r^p(\omega, k_x)$  的增益贡献导致 SE 增强. 同时, 相较于 hBN/VO<sub>2</sub> 异质结构在 I 型双曲线带内的 SE 率, 增大 hBN 的厚度  $t$  会使得在 II 型双曲线带内的峰值 SE 率呈明显增大的趋势且发生蓝移现象, 这说明 hBN/VO<sub>2</sub> 异质结构在 II 型双曲线带内的峰值 SE 率呈现对 hBN 的厚度  $t$  的依赖性<sup>[22]</sup>. 此外, 在图 4 给定的几种 hBN 厚度下, 当 hBN/VO<sub>2</sub> 异质结构中 VO<sub>2</sub> 基底经历从 VO<sub>2</sub>(I) 到 VO<sub>2</sub>(M) 的相变时, 其在 I 型双曲线带内 SE 率增强的波数区域均逐渐增大, 在 II 型双曲线带内 SE 率增强的波数区域和数值均明显减小. 而由于在 I 和 II 型双曲线带外没有 PhPs 的支持, 所以其 SE 率变化很小.

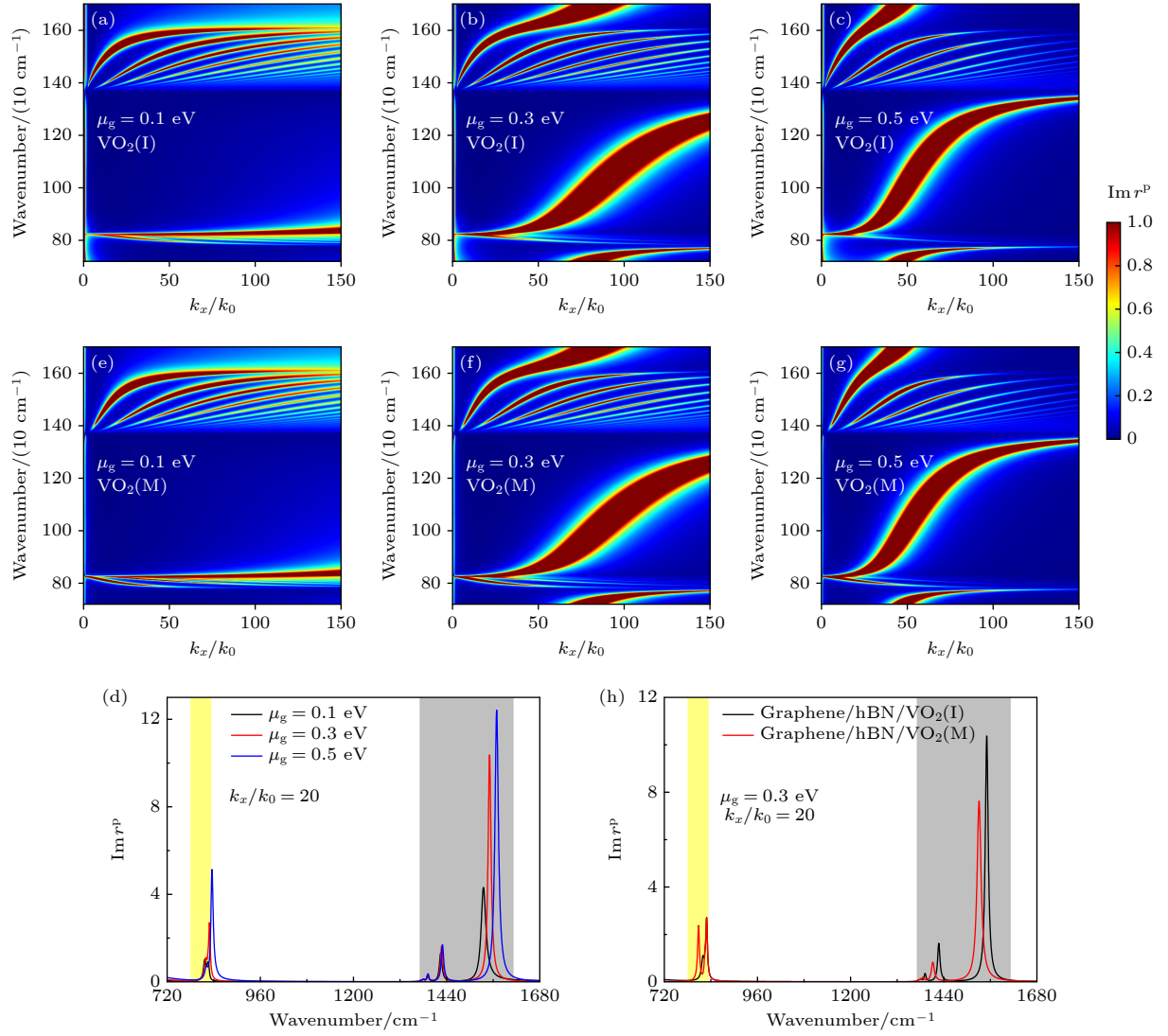


图 3 (a)–(c)/(e)–(g) 石墨烯/hBN/VO<sub>2</sub> 异质结构的耦合色散随石墨烯化学势  $\mu_g$  的变化关系; (d) 石墨烯/hBN/VO<sub>2</sub>(I) 异质结构在  $k_x/k_0 = 20$  的色散曲线随石墨烯化学势  $\mu_g$  的变化规律; (h) 石墨烯/hBN/VO<sub>2</sub> 异质结构在  $k_x/k_0 = 20$  的色散曲线

Fig. 3. (a)–(c)/(e)–(g) Coupling dispersions of graphene/hBN/VO<sub>2</sub> heterostructures as function of graphene chemical potentials  $\mu_g$ ; (d) dispersion curves of graphene/hBN/VO<sub>2</sub>(I) heterostructures at  $k_x/k_0 = 20$  as function of graphene chemical potential  $\mu_g$ ; (h) dispersion curves of graphene/hBN/VO<sub>2</sub> heterostructures at  $k_x/k_0 = 20$ .

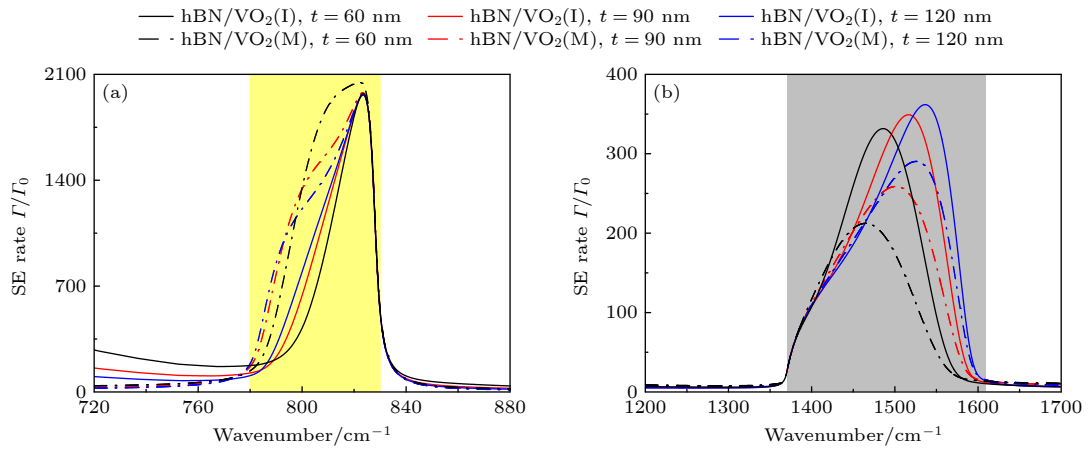


图 4 hBN/VO<sub>2</sub> 异质结构在 (a) I 和 (b) II 型双曲线带内的 SE 率随 hBN 厚度  $t$  的变化规律

Fig. 4. SE rates of hBN/VO<sub>2</sub> heterostructures within (a) type-I and (b) type-II hyperbolic bands as function of hBN thickness  $t$ .

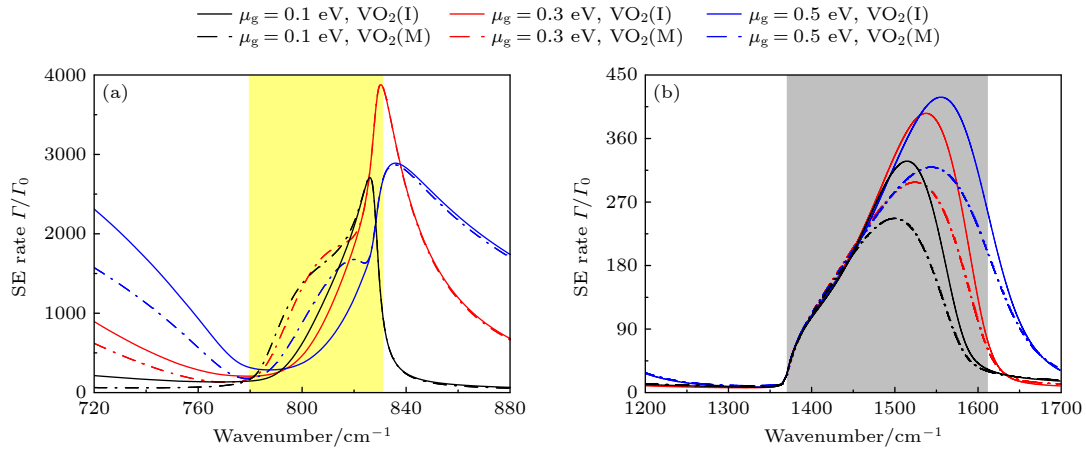


图 5 石墨烯/hBN/VO<sub>2</sub> 异质结构在 (a) I 和 (b) II 双曲线带内的 SE 率随  $\mu_g$  的变化规律.  $t = 90$  nm

Fig. 5. SE rates of graphene/hBN/VO<sub>2</sub> heterostructures within (a) type-I and (b) type-II hyperbolic bands as function of  $\mu_g$ .  $t = 90$  nm.

图 5(a) 和图 5(b) 分别给出了石墨烯/hBN/VO<sub>2</sub> 异质结构在 I 和 II 型双曲线带的 SE 率随石墨烯化学势  $\mu_g$  的变化规律. 相较于图 4 中 hBN/VO<sub>2</sub> 异质结构的 SE 率而言, 在 hBN/VO<sub>2</sub> 异质结构中添加石墨烯后, 因 hBN PhPs 和石墨烯 SPPs 在双曲线带内产生 HPPPs 的贡献, 图 5 中石墨烯/hBN/VO<sub>2</sub> 异质结构的 SE 率明显增强. 在相同的 hBN 厚度 ( $t = 90$  nm) 下, 当  $\mu_g = 0.3$  eV 时, 石墨烯/hBN/VO<sub>2</sub>(I) 异质结构在 I 型双曲线带内的最大 SE 率在  $829.4 \text{ cm}^{-1}$  处且  $\Gamma/\Gamma_0 = 3894.7$ , 而 II 型双曲线带内的最大 SE 率在  $1538.1 \text{ cm}^{-1}$  处且  $\Gamma/\Gamma_0 = 397.1$ ; 作为对比, hBN/VO<sub>2</sub>(I) 异质结构在 I 型双曲线带内的最大 SE 率在  $823.6 \text{ cm}^{-1}$  处且  $\Gamma/\Gamma_0 = 1982.3$ , 而 II 型双曲线带内的最大 SE 率在  $1516.1 \text{ cm}^{-1}$  处且  $\Gamma/\Gamma_0 = 350.2$ , 这说明添加石墨烯可以明显增强 hBN/VO<sub>2</sub> 异质结构的 SE 率 [22], 且由于 hBN PhPs 和石墨烯 SPPs 的耦合使 SE 率峰值位置发生红移. 将石墨烯的化学势从  $\mu_g = 0.1$  eV 逐渐增大到  $\mu_g = 0.5$  eV, 可以发现石墨烯/hBN/VO<sub>2</sub> 异质结构在 I 型双曲线带的 SE 率先增大后减小且基本在  $\mu_g = 0.3$  eV 达到最大值, 而其在 II 型双曲线带的 SE 率则随石墨烯化学势的增大而逐渐增大. 和 hBN/VO<sub>2</sub> 异质结构在 I 和 II 型双曲线带外的 SE 率相比, 由于 hBN PhPs 和石墨烯 SPPs 在双曲线带外耦合产生的 SPPPs 的贡献, 使得石墨烯/hBN/VO<sub>2</sub> 异质结构在双曲线带外的 SE 率明显增强. 此外, 和 hBN/VO<sub>2</sub> 异质结构类似, 当 VO<sub>2</sub> 基底经历从 VO<sub>2</sub>(I) 到 VO<sub>2</sub>(M) 的相变时, 亦可实现石墨烯/hBN/VO<sub>2</sub> 异质结构 SE 率的主动调谐. 以

上研究表明在 hBN/VO<sub>2</sub> 异质结构中加入石墨烯时, 可在 VO<sub>2</sub> 相变调谐基础上提供另一种调谐 SE 率的方法.

## 4 结 论

本文借助于 VO<sub>2</sub> 的相变特性以及石墨烯中可调谐的 SPPs, 提出了 hBN/VO<sub>2</sub> 以及石墨烯/hBN/VO<sub>2</sub> 异质结构来研究 hBN PhPs 和 SE 率的主动可调谐性. 研究表明 hBN/VO<sub>2</sub> 异质结构的 PhPs 色散分支集中于 hBN 的 I 和 II 型双曲线带内, 且 hBN/VO<sub>2</sub> 异质结构在其双曲线带内的 PhPs 色散随着 VO<sub>2</sub> 经历从 VO<sub>2</sub>(I) 到 VO<sub>2</sub>(M) 相变具有红移现象. 为了进一步增加 hBN PhPs 色散的可调谐性, 研究了石墨烯/hBN/GST 异质结构的耦合色散分布, 结果表明石墨烯/hBN/GST 系统在 hBN 两个双曲线带内存在 HPPPs, 而在 hBN 两个双曲线带外存在 SPPPs. 此外, 借助于 VO<sub>2</sub> 从绝缘态过渡到金属态时光学特性的差异以及石墨烯可调谐的 SPPs, 可以在获得数百倍 SE 率增强的同时实现 SE 率的主动调谐. 本研究为使用相变材料和石墨烯等功能材料调谐自然或人工双曲各向异性材料与光的相互作用机制奠定了基础.

## 参考文献

- [1] Poddubny A, Iorsh I, Belov P, Kivshar Y 2013 *Nat. Photonics* **7** 948
- [2] Drachev V P, Podolskiy V A, Kildishev A V 2013 *Opt. Express* **21** 15048
- [3] Wu X, McEleney C A, González-Jiménez M, Macêdo R 2019 *Optica* **6** 1478

- [4] Zhou K, Lu L, Li B, Cheng Q 2021 *J. Appl. Phys.* **130** 093102
- [5] Zhou C L, Zhang Y, Torbatian Z, Novko D, Antezza M 2022 *Phys. Rev. Mater.* **6** 075201
- [6] Liu W, Huang Y, Wu H H 2017 *J. Eng. Thermophys.* **38** 2665 (in Chinese) [刘伟, 黄勇, 吴会海 2017 工程热物理学报 **38** 2665]
- [7] Jiang H, Choudhury S, Kudyshev Z A, Wang D 2019 *Photonics Res.* **7** 815
- [8] Zhang Q, Hu G, Ma W, Li P, Krasnok A, Hillenbrand R, Ali A 2021 *Nature* **597** 187
- [9] Dai S, Zhang J, Ma Q, Kittiwatanakul S, McLeod A, Chen, X 2019 *Adv. Mater.* **31** 1900251
- [10] Fei Z, Rodin A, Andreev G O 2012 *Nature* **487** 82
- [11] Ju L, Geng B, Horng J 2011 *Nat. Nanotechnol.* **6** 630
- [12] Zhou K, Cheng Q, Lu L 2020 *Appl. Opt.* **59** 595
- [13] Yang C, Han W H, Chen J D, Zhang X D, Guo Y Y 2020 *Micro-Nano Electron. Technol.* **57** 341 (in Chinese) [杨冲, 韩伟华, 陈俊东, 张晓迪, 郭仰岩 2020 微纳电子技术 **57** 341]
- [14] Luo M H, Xu M J, Huang Q W, Li P, He Y B 2016 *Acta Phys. Sin.* **65** 047201 (in Chinese) [罗明海, 徐马记, 黄其伟, 李派, 何云斌 2016 物理学报 **65** 047201]
- [15] Benkahoul M, Chaker M, Margot J 2011 *Sol. Energy Mater. Sol. Cells.* **95** 3504
- [16] Zhao H P, Z X Y, He Y B, Dou S L, Li Y, Li X F, Zhan Y H 2021 *Acta Opt. Sin.* **41** 1523001 (in Chinese) [赵海鹏, 章新源, 何云斌, 豆书亮, 李垚, 李孝峰, 詹耀辉 2021 光学学报 **41** 1523001]
- [17] Soltani M, Chaker M, Haddad E 2004 *Appl. Phys. Lett.* **85** 1958
- [18] Lee S, Hippalgaonkar K, Yang F 2017 *Science* **355** 371
- [19] Tang K, Dong K, Li J 2021 *Science* **374** 1504
- [20] Huang Y Q, Li Y, Li Z P, Pei J H, Tian R, Liu J, Zhou J Z, Fang B Y, Wang X H, Xiao H 2019 *Acta Optics Sinica* **39** 0316001 (in Chinese) [黄雅琴, 李毅, 李政鹏, 裴江恒, 田蓉, 刘进, 周建忠, 方宝英, 王晓华, 肖寒 2019 光学学报 **39** 0316001]
- [21] Mlyuka N, Niklasson G A, Granqvist C-G 2009 *Sol. Energy Mater. Sol. Cells.* **93** 1685
- [22] Kumar A, Low T, Fung K H 2015 *Nano Lett.* **15** 3172
- [23] Zhou K, Cheng Q, Lu L 2020 *Opt. Express* **28** 1647
- [24] Zhou K, Cheng Q, Song J 2019 *Opt. Lett.* **44** 3430
- [25] Dai S, Ma Q, Andersen T, Mcleod A S, Fei Z, Liu M K, Wagner M, Watanabe K, Taniguchi T, Thieme M, Keilmann F, Jarillo-Herrero P, Fogler M M, Basov D N 2015 *Nat. Commun.* **6** 6963
- [26] Debu D T, Ladani F T, French D 2019 *npj 2D Mater. Appl.* **3** 1
- [27] Álvarez - Pérez G, Folland T G, Errea I 2020 *Adv. Mater.* **32** 1908176
- [28] Zhao B, Guizal B, Zhang Z M 2017 *Phys. Rev. B* **95** 246437
- [29] Purcell E M, Torrey H C, Pound R V 1946 *Phys. Rev.* **69** 37
- [30] Zhao Y S, Song J F, Han W H, Li X M, Du G T, Gao D S 1999 *Acta Optics Sinica.* **19** 452 (in Chinese) [赵永生, 宋俊峰, 韩伟华, 李雪梅, 杜国同, 高鼎三 1999 光学学报 **19** 452]
- [31] Cortes C, Newman W, Molesky S 2012 *J. Opt.* **14** 063001
- [32] Krishnamoorthy H N, Jacob Z, Narimanov E 2012 *Science* **336** 205
- [33] Zhou K, Zhong X, Cheng Q, Wu X 2022 *Opt. Mater.* **131** 112623



# Active tuning hBN phonon polaritons and spontaneous emission rates based on VO<sub>2</sub> and graphene<sup>\*</sup>

Zhou Kun<sup>1)†</sup> Ma Hao-Yue<sup>1)</sup> Sun Xi-Xian<sup>1)</sup> Wu Xiao-Hu<sup>2)‡</sup>

1) (School of Safety Engineering, China University of Mining and Technology, Xuzhou 221116, China)

2) (Shandong Institute of Advanced Technology, Jinan 250100, China)

( Received 12 November 2022; revised manuscript received 31 December 2022 )

## Abstract

Active tunability of phonon dispersion and spontaneous emission (SE) are still open problems due to their exciting potential applications. In view of the fact that polaritons are very sensitive to the dielectric environment, in this study, with the help of the differences in optical property between the phase change material vanadium dioxide (VO<sub>2</sub>) during the phase transition from the insulating state to metallic state and the tunable surface plasmon polaritons (SPPs) in graphene, a heterostructure composed of hyperbolic material hexagonal boron nitride (hBN) and graphene and VO<sub>2</sub> is proposed to investigate the active tunability of hBN phonon polaritons (PhPs). In order to illustrate the underlying physical mechanism of the above heterostructures, the dispersion distributions of the above heterostructures are calculated and represented by the imaginary part of the p-polarized Fresnel reflection coefficient of the heterostructure, meanwhile the dispersion relation of the hBN/VO<sub>2</sub> heterostructure in hyperbolic region is verified by the quasi-static approximation method.

Results indicate that the active tunability of hBN PhPs inside type-I and type-II hyperbolic bands can be achieved by controlling VO<sub>2</sub> phase transition in hBN/VO<sub>2</sub> heterostructure. The PhP dispersion change of the hBN/VO<sub>2</sub> heterostructure is mainly caused by the change of the VO<sub>2</sub> dielectric function when VO<sub>2</sub> substrate changes from the insulating state into metallic state, which affects the total Fresnel reflection coefficient of the heterostructure, finally resulting in the PhP dispersion change of hBN/VO<sub>2</sub> heterostructure. When graphene is introduced into the hBN/VO<sub>2</sub> heterostructure, coupled hyperbolic plasmon-phonon polaritons (HPPPs) are obtained within type-I and type-II hyperbolic band of hBN, while the surface plasmon-phonon polaritons (SPPPs) are generated outside its hyperbolic bands. Moreover, comparative analysis of SE rates is presented for a quantum emitter positioned with the hBN/VO<sub>2</sub> and graphene/hBN/VO<sub>2</sub> heterostructure, revealing that the SE rates of these heterostructures can be modulated by the passive means including changing the hBN thickness and distance between the dipole emitter and the proposed heterostructure, and also by the active means including tuning VO<sub>2</sub> phase states and graphene chemical potential without changing structural configurations. This study provides a theoretical guidance in realizing active tunability of both phonon dispersion and SE rate of the natural or artificial anisotropic optical materials by using functional materials including phase change materials and graphene.

**Keywords:** anisotropic optical materials, phase change material, graphene, phonon polaritons, spontaneous emission rate

**PACS:** 42.25.Bs, 41.20.Jb, 78.20.Ci, 71.38.-k

**DOI:** 10.7498/aps.72.20222167

\* Project supported by National Natural Science Foundation of China (Grant No. 52204258), the Fundamental Research Funds for the Central Universities (Grant No. 2022QN1017), the Xinjiang Key Research and Development Special Task, China (Grant No. 2022B03003-3), and the Natural Science Foundation of Shandong Province, China (Grant No. ZR2022YQ57).

† Corresponding author. E-mail: [zhoukun0209@163.com](mailto:zhoukun0209@163.com)

‡ Corresponding author. E-mail: [xiaohu.wu@iat.cn](mailto:xiaohu.wu@iat.cn)



基于VO<sub>2</sub>和石墨烯实现hBN声子极化激元和自发发射率的主动调谐

周昆 马豪悦 孙希贤 吴小虎

Active tuning hBN phonon polaritons and spontaneous emission rates based on VO<sub>2</sub> and graphene

Zhou Kun Ma Hao-Yue Sun Xi-Xian Wu Xiao-Hu

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 72, 074201 (2023) DOI: 10.7498/aps.72.20222167

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.72.20222167>

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

基于磁激元效应的石墨烯-金属纳米结构近红外吸收研究

Near-infrared absorption of graphene-metal nanostructure based on magnetic polaritons

物理学报. 2018, 67(11): 118101 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180196>

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>

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>

石墨烯等离激元增强红外光谱

Graphene plasmon enhanced infrared spectroscopy

物理学报. 2019, 68(14): 148103 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190903>

太赫兹辐射场下的石墨烯光生载流子和光子发射

Photon-excited carriers and emission of graphene in terahertz radiation fields

物理学报. 2018, 67(2): 027801 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20171730>

基于纳米金属-石墨烯耦合的多频段等离激元诱导透明

Multiband plasmon-induced transparency based on nanometals-graphene hybrid model

物理学报. 2020, 69(17): 174201 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200200>