

Si₃N₄/WS₂/Al₂O₃ 三明治型纳米激光器结构参数优化

刘 宁^{1,2,3}, 周谷禹⁴, 杨 夕^{1,2,3}, 徐纪鹏^{1,2,3}, 洪琦琳^{1,2,3}, 黄先燕^{1,2,3}, 张检发^{1,2,3}, 刘 肯^{1,2,3*}, 朱志宏^{1,2,3*}

1. 国防科技大学 前沿交叉学科学院, 湖南长沙 410073;
2. 国防科技大学 新型纳米光电信息材料与器件湖南省重点实验室, 湖南长沙 410073;
3. 国防科技大学 南湖之光实验室, 湖南长沙 410073;
4. 中国卫星海上测控部, 江苏江阴 214400)

摘要: 高性能的片上纳米激光器对通信、传感以及量子等领域的发展有着至关重要的意义。纳米激光器中高的光学限制因子可以保证更大的模式增益, 实现更低的激光器阈值。首先阐明了借助物理气相沉积和原子层沉积制备 Si₃N₄/WS₂/Al₂O₃ 三明治型纳米激光器阵列的工艺流程; 构建了该纳米激光器的仿真模型, 在仿真模型中对实际结构进行了简化并分析了 Al₂O₃ 覆盖层厚度 T 、Si₃N₄ 微盘直径 D 和厚度 H 对光学限制因子的影响。光学限制因子随着 Al₂O₃ 覆盖层 T 以及 Si₃N₄ 微盘直径 D 的增加有先增加后减小的趋势, Si₃N₄ 微盘厚度 H 的减小也可以显著增加激光器的光学限制因子; 最后展示了器件的荧光以及扫描电子显微镜的表征结果。该工作为集成光学芯片中可规模制备的高性能纳米激光器打下了良好基础。

关键词: 纳米光子学; 纳米激光器; 结构仿真; 微纳加工; 二维材料; 物理气相沉积
中图分类号: O436 **文献标志码:** A **DOI:** 10.3788/IRLA20230196

0 引言

可集成的高性能纳米激光器在光通信等领域有着重要的应用前景^[1-3]。层状的过渡金属硫族化合物 (Transition Metal Chalcogenides, TMDs) 由于具有原子层厚度、较大的激子结合能等优势^[4], 可以显著降低基于 TMDs 的微腔纳米激光器的尺寸, 提高芯片的集成度^[5-9]。然而, 传统基于二维材料转移方法制备的基于 TMDs 的微腔激光器只适用于实验室研究^[10-15], 无法规模化制备。基于以上背景, 笔者课题组提出了一种利用直接生长方法制备的 Si₃N₄/WS₂/Al₂O₃ 三明治型纳米激光器阵列^[16]。基于实验结果, 对该纳米激光器进行了仿真模型的构建并对关键参数进一步进行仿真优化, 并展示部分器件的表征结果。该工作对光通信等领域

可规模制备的高性能纳米激光器具有一定的指导意义。

1 加工流程及基础理论

1.1 加工流程

基于直接生长方法制备的三明治型纳米激光器阵列加工流程如图 1 所示。在前期制备好的高品质因子 (Q 值) 的悬空 Si₃N₄ 微盘上通过物理气相沉积 (Physical Vapor Deposition, PVD) 的方法生长单层硫化钨 (WS₂), 作为纳米激光器中的增益材料; 为了保证单层 WS₂ 能在激光泵浦条件下稳定工作, 同时为了保证单层增益材料中更大的光学限制因子, 在单层 WS₂ 生长完成后, 借助原子层沉积 (Atomic Layer Deposition, ALD) 的方法在 WS₂ 层上沉积一定厚度的

收稿日期: 2023-04-04; 修订日期: 2023-05-19

基金项目: 国家自然科学基金 (12274462); 湖南省科技厅项目 (2017RS3039, 2018JJ1033)

作者简介: 刘宁, 男, 博士生, 主要从事纳米光子学方面的研究。

导师(通讯作者)简介: 刘肯, 男, 教授, 硕士生导师, 博士, 主要从事纳米光子学方面的研究。

朱志宏, 男, 教授, 博士生导师, 博士, 主要从事纳米光子学方面的研究。

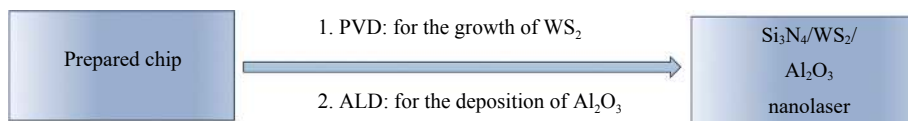


图 1 利用 PVD 和 ALD 制备 Si₃N₄/WS₂/Al₂O₃ 三明治型纳米激光器阵列流程示意图

Fig.1 Schematic diagram of preparing the Si₃N₄/WS₂/Al₂O₃ sandwich nanolaser array by PVD and ALD

氧化铝 (Al₂O₃), 制备出 Si₃N₄/WS₂/Al₂O₃ 三明治型纳米激光器阵列。

1.2 限制因子

对于该 Si₃N₄/WS₂/Al₂O₃ 三明治型纳米激光器, 光学限制因子 Γ 可以表示为:

$$\Gamma = \left(\int_{\text{WS}_2} \varepsilon_{\text{WS}_2} |E_{\parallel}|^2 dV \right) / \left(\int_V \varepsilon |E|^2 dV \right) \quad (1)$$

式中: ε 为介电常数; E 为电场强度。

光学限制因子可以理解为由局域在有源层中的能量 (单层 WS₂) 与器件中整体能量的比值。公式 (1) 中的 dV 表示对体积的积分, 其中单层 WS₂ 的厚度为 0.65 nm。

1.3 仿真模型

不同于传统的二维材料转移方式, 利用这种直接生长的方式, 可以在 Si₃N₄ 微盘的上表面、边缘和下表面都生长单层的增益材料, 如图 2(a) 所示。由于 Si₃N₄ 微盘下方的氧化硅 (SiO₂) 支柱不会对位于微盘边缘的回音壁模式 (Whispering Gallery Modes, WGMs) 产生影响, 所以在构建仿真模型时省去了 SiO₂ 支柱结构。其次, 在构建的如图 2(b) 所示的简化模型中, 也省略了因 SiO₂ 支柱导致的 WS₂ 的圆形缺口。由于仿真模型中有源区的体积要略大于实际器件中的有源区体积, 仿真计算所得的光学限制因子也会略大于实际器件中的数值。但是微盘腔的 WGMs 主要分布在微盘边缘, 因此这种简化处理不会对最终的结论产生影响, 被 WS₂ 完全包裹的微盘与底部有 WS₂ 缺口的微盘, 其性能基本不会有差别。

前期的实验中, 在 Al₂O₃ 覆盖层厚度为 130 nm、Si₃N₄ 微盘直径为 300 nm、Si₃N₄ 微盘厚度为 300 nm 的三明治型纳米激光器中观察到了室温激射行为。

基于以上实验中的初步结果, 文中将进一步分析 Al₂O₃ 覆盖层的厚度 T 、Si₃N₄ 微盘直径 D 以及厚度 H 对光学限制因子的影响, 为后期器件参数的优化提供指导。

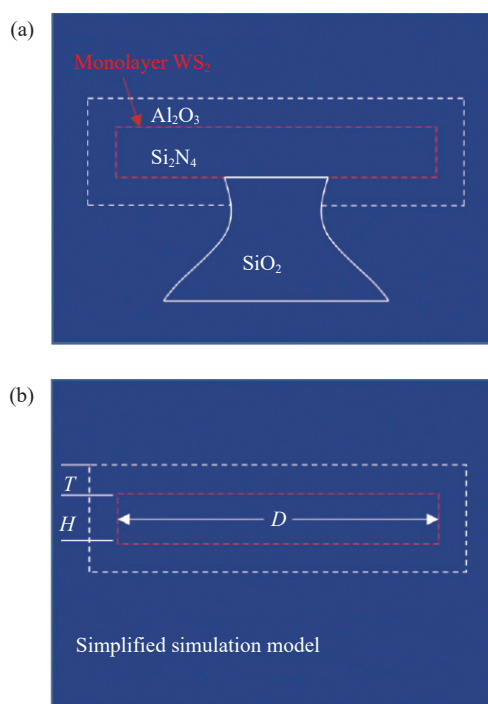


图 2 (a) Si₃N₄/WS₂/Al₂O₃ 三明治型纳米激光器结构示意图; (b) 用于仿真分析简化模型示意图

Fig.2 (a) Structural diagram of the Si₃N₄/WS₂/Al₂O₃ sandwich nanolaser; (b) Simplified model diagram for the simulation analysis

2 仿真结果分析

图 3 为 $T = 130 \text{ nm}$ 、 $D = 7 \mu\text{m}$ 、 $H = 300 \text{ nm}$ 时该纳米激光器的本征横电 (TE) 模式, 其中图 3(a) 为基 TE 径向模式, 图 3(b) 和 (c) 为高阶 TE 径向模式。为便于分析, 下文对限制因子的分析如果不做特殊说明均针对于基 TE 径向模式。

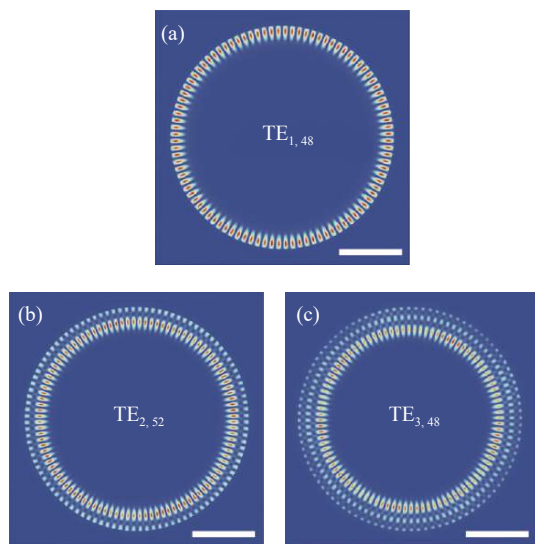


图 3 $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{WS}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ 三明治型纳米激光器结构的 (a) 基 TE 径向模式和 (b)~(c) 高阶 TE 径向模式。标尺: $2\ \mu\text{m}$

Fig.3 (a) Fundamental TE radial mode and (b)-(c) high-order TE radial mode of the $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{WS}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ sandwich nanolaser. Scale bar: $2\ \mu\text{m}$

2.1 Al_2O_3 覆盖层厚度对限制因子的影响

图 4 为光学限制因子随着 Al_2O_3 覆盖层厚度 T 的变化。 $D = 7\ \mu\text{m}$, $H = 300\ \text{nm}$ 保持不变。从图 4 中可以看出, 当 Al_2O_3 覆盖层的厚度 T 为 $90\ \text{nm}$ 时, 光学限制因子为 3.63% ; 随着 T 的增加, 光学限制因子也随之增加; 当 T 为 $120\ \text{nm}$ 时, 光学限制因子为 4.34% ; 当 T 进一步增加, 光学限制因子有下降的趋势, 说明覆盖层厚度的增加并不能一直增加光学限制因子, 同时

还会增加器件的尺寸。图 5 所示为不同 Al_2O_3 覆盖层厚度条件下器件本征 TE 电场分布的侧视图。从图 5 中可以看出, 在 Al_2O_3 覆盖层的厚度从 $90\ \text{nm}$ 增加到 $120\ \text{nm}$ 的过程中, 微盘中 WGMs 场强最大的位置有明显的向右移动趋势。微盘中的光学模式与单层增益材料的相互作用变强, 这就从光学模式分布的角度解释了为什么随着 Al_2O_3 覆盖层厚度的增加光学限制因子也随之增加; 当 Al_2O_3 覆盖层的厚度进一步增加时, 可以看出微盘中的 WGMs 不再出现向微盘边缘移动的现象, 此时光学限制因子有一定的下降趋势, 但仍处于较高的数值范围内 ($>4.2\%$)。

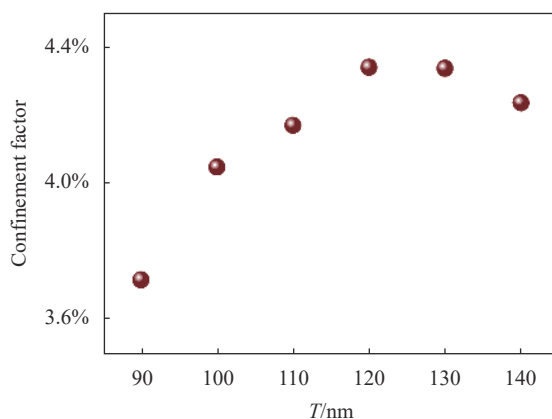


图 4 $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{WS}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ 三明治型纳米激光器光学限制因子随 Al_2O_3 覆盖层厚度 T 的变化

Fig.4 Variation of optical confinement factor of the $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{WS}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ sandwich nanolaser with Al_2O_3 coating thickness T

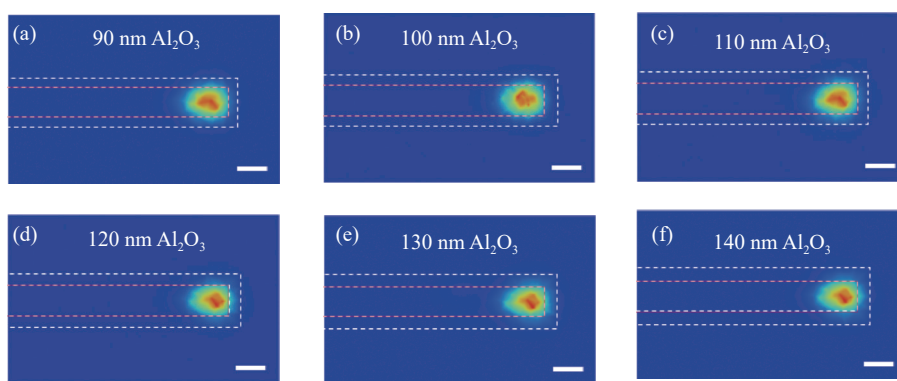


图 5 不同 Al_2O_3 覆盖层厚度条件下 $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{WS}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ 三明治型纳米激光器电场分布的侧视图。标尺: $300\ \text{nm}$

Fig.5 Side view of electric field distribution of the $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{WS}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ sandwich nanolaser with different Al_2O_3 coating thickness. Scale bar: $300\ \text{nm}$

2.2 Si_3N_4 微盘直径对限制因子的影响

下面分析 Si_3N_4 微盘直径 D 对光学限制因子的影响。分析参数 D 的影响时, 基于前期实验中的结果, 保持 $T = 130\ \text{nm}$, $H = 300\ \text{nm}$ 不变。从图 6 中可以

看出, 当微盘直径 $D \leq 6\ \mu\text{m}$ 时, 随着微盘直径的增加, 光学限制因子也随之增加; 当微盘直径 $D > 6\ \mu\text{m}$ 时, 限制因子有一定的下降。当微盘直径 D 在 $4.0 \sim 7.0\ \mu\text{m}$ 范围内变化, 限制因子的数值均大于 4.1% 。

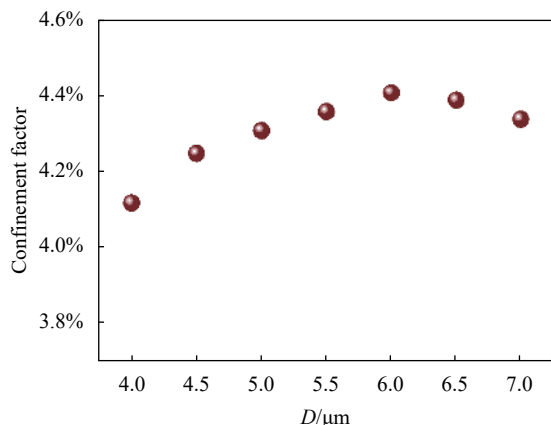


图 6 $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{WS}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ 三明治型纳米激光器光学限制因子随 Si_3N_4 微盘直径 D 的变化

Fig.6 Variation of optical confinement factor of the $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{WS}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ sandwich nanolaser with Si_3N_4 microdisk diameter D

2.3 Si_3N_4 微盘厚度之间对限制因子的影响

下面分析 Si_3N_4 微盘厚度 H 对光学限制因子的影响。分析微盘厚度 H 的影响时, 同样基于之前实验中的参数, $T = 130 \text{ nm}$, $D = 7 \mu\text{m}$ 保持不变。从图 7 中可以看出, 当微盘厚度减小时, 光学限制因子随之增加; 当微盘厚度小于 150 nm 时, 减小微盘厚度对限制因子的增加效果更为显著。尽管从理论上分析, Si_3N_4 微盘的厚度减小时, 光学限制因子有明显的提升效果, 但是由于 Si_3N_4 微盘在实验中是悬空于 SiO_2 支柱的上方, 微盘厚度的减小将显著降低器件的稳定性, 器件制备的难度也将显著提升。

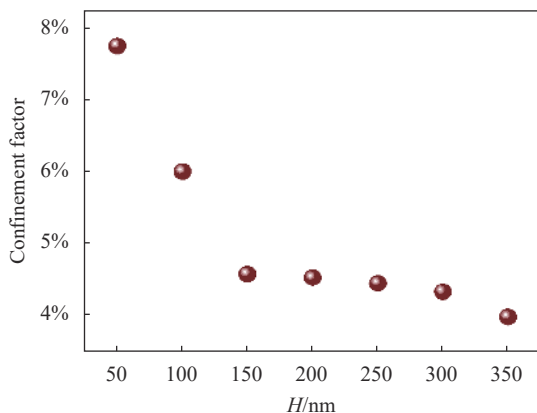


图 7 $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{WS}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ 三明治型纳米激光器光学限制因子随 Si_3N_4 微盘厚度 H 的变化

Fig.7 Variation of optical confinement factor of the $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{WS}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ sandwich nanolaser with Si_3N_4 microdisk thickness H

3 器件表征

借助 PVD 方法直接在悬空的 Si_3N_4 微盘上生长

层状 WS_2 后所得器件的表征结果如图 8 所示。图 8(a) 和图 8(b) 为器件的光致发光 (PL) 图, 图 8(c) 为在微盘阵列上生长层状 WS_2 后的扫描电子显微镜 (SEM) 图像; 图 8(d) 为单个 $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{WS}_2$ 微盘的 SEM 图。从

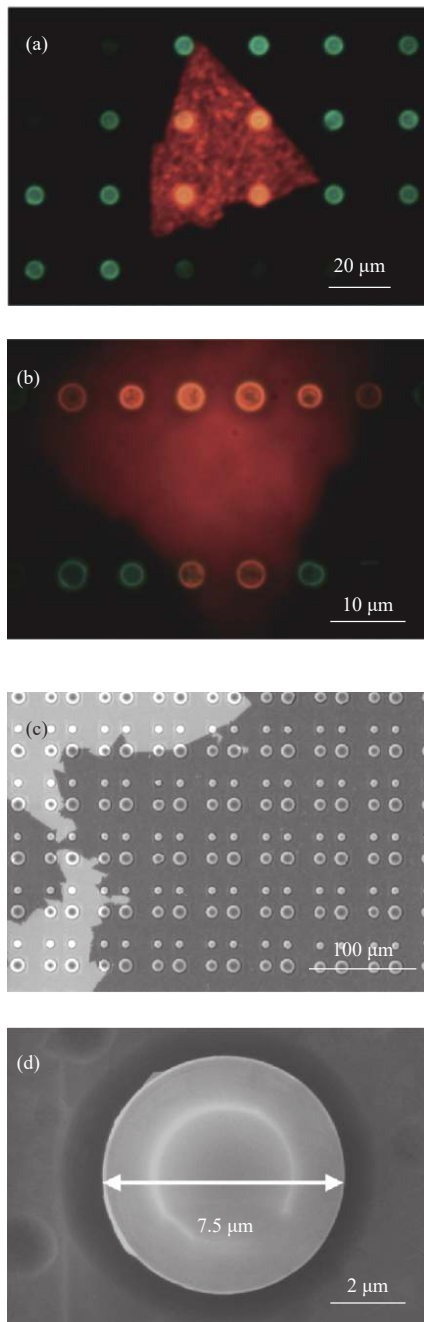


图 8 借助 PVD 方法在 Si_3N_4 微盘上生长层状 WS_2 后器件的表征结果。(a)~(b) 器件的 PL 图像; (c) 在微盘阵列和 (d) 单个微盘上生长 WS_2 后的 SEM 表征结果

Fig.8 Characterization results of devices after layered WS_2 was grown onto Si_3N_4 microdisks by the PVD method. (a)~(b) PL images of the device; SEM characterization results of WS_2 grown onto (c) microdisk array and (d) a single microdisk

图 8 中可以看出,在多个微盘上借助 PVD 方法直接生长单层增益材料制备纳米激光器是可行的。

在 Si_3N_4 微盘上借助 PVD 方法生长 WS_2 增益材料后,为保证器件在激光器泵浦下稳定工作以及更大的模式增益和限制因子,需要借助 ALD 方法在 WS_2 上沉积 Al_2O_3 。两个覆盖有单层 WS_2 和 Al_2O_3 覆盖层的 Si_3N_4 微盘在激光阈值以下 (60 W/cm^2) 和以上 (290 W/cm^2) 的实空间图像如图 9 所示。由于单层

WS_2 的激子出射和位于微盘边缘 WGMs 之间的有效耦合,激光发射在 PL 图像中表现为从盘边缘出射的亮光。

4 结 论

文中基于 $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{WS}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ 三明治型纳米激光器的实验结果进行了参数仿真与优化,分析了 Al_2O_3 覆盖层 T 、 Si_3N_4 微盘直径 D 和厚度 H 对光学限制因子的影响。从仿真分析中可以看出,光学限制因子随着 Al_2O_3 覆盖层 T 以及 Si_3N_4 微盘直径 D 的增加先增加后减小; Si_3N_4 微盘厚度 H 的减小也可以显著增加该激光器的光学限制因子。该工作为后期器件参数的进一步优化打下了良好的仿真基础,对光通信等领域可规模制备的高性能纳米激光器具有一定的指导意义。

参考文献:

- [1] Ning Cunzheng. Semiconductor nanolasers and the size-energy-efficiency challenge: a review [J]. *Advanced Photonics*, 2019, 1(1): 014002.
- [2] Atabaki A H, Moazeni S, Pavanello F, et al. Integrating photonics with silicon nanoelectronics for the next generation of systems on a chip [J]. *Nature*, 2018, 556(7701): 349-354.
- [3] Cheng Q, Bahadori M, Glick M, et al. Recent advances in optical technologies for data centers: a review [J]. *Optica*, 2018, 5(11): 1354-1370.
- [4] Xia F, Wang H, Xiao D, et al. Two-dimensional material nanophotonics [J]. *Nature Photonics*, 2014, 8(12): 899-907.
- [5] Wang L, Zhou X, Yang S, et al. 2D-material-integrated whispering-gallery-mode microcavity [J]. *Photonics Research*, 2019, 7(8): 905-916.
- [6] Du W, Li C, Sun, J, et al. Nanolasers based on 2D materials [J]. *Laser & Photonics Reviews*, 2020, 14(12): 2000271.
- [7] Li Y, Sun H, Gan L, et al. Optical properties and light-emission device applications of 2D layered semiconductors [J]. *Proceedings of the IEEE*, 2020, 108(5): 676-703.
- [8] You J, Luo Y, Yang J, et al. Hybrid/Integrated silicon photonics based on 2D materials in optical communication nanosystems [J]. *Laser & Photonics Reviews*, 2020, 14(12): 2000239.
- [9] Liu D S, Wu J, Xu H, et al. Emerging light-emitting materials for photonic integration [J]. *Advanced Materials*, 2021, 33(4): 2003733.
- [10] Reed J C, Zhu A Y, Zhu H, et al. Wavelength tunable microdisk

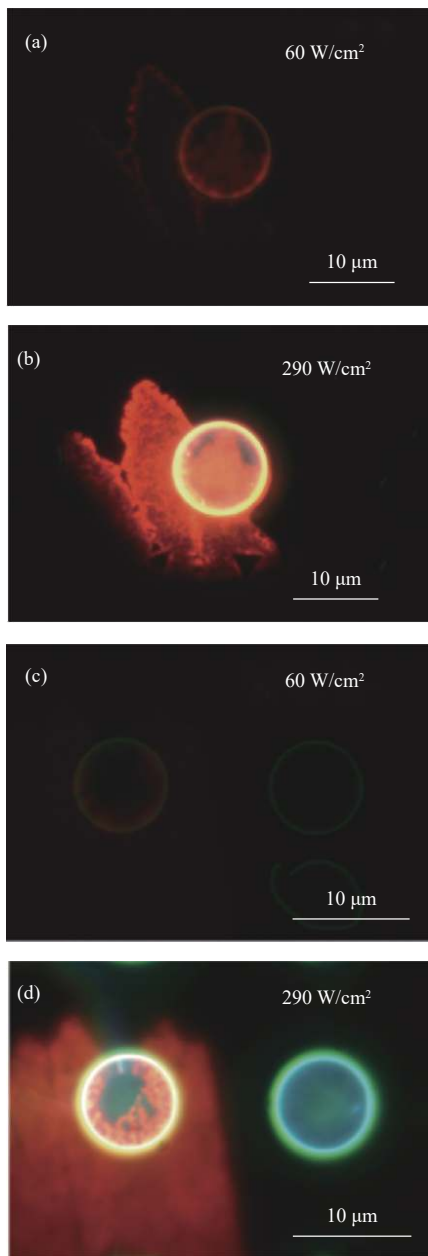


图 9 $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{WS}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ 三明治型纳米激光器在低于阈值 ((a)、(c)) 和高于阈值 ((b)、(d)) 条件下的 PL 图像

Fig.9 PL images of the $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{WS}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ sandwich nanolasers below ((a), (c)) and above ((b), (d)) the lasing threshold

- cavity light source with a chemically enhanced MoS₂ emitter [J]. *Nano Letters*, 2015, 15(3): 1967-1971.
- [11] Wu S, Buckley S, Schaibley J R, et al. Monolayer semiconductor nanocavity lasers with ultralow thresholds [J]. *Nature*, 2015, 520(7545): 69-72.
- [12] Ye Y, Wong Z J, Lu X, et al. Monolayer excitonic laser [J]. *Nature Photonics*, 2015, 9(11): 733-737.
- [13] Li Y, Zhang J, Huang D, et al. Room-temperature continuous-wave lasing from monolayer molybdenum ditelluride integrated with a silicon nanobeam cavity [J]. *Nature Nanotechnology*, 2017, 12(10): 987-992.
- [14] Fang H, Liu J, Li H, et al. 1 305 nm few-layer MoTe₂-on-silicon laser-like emission [J]. *Laser & Photonics Reviews*, 2018, 12(6): 1800015.
- [15] Liu Y, Fang H, Rasmita A, et al. Room temperature nanocavity laser with interlayer excitons in 2D heterostructures [J]. *Science Advances*, 2019, 5(4): eaav4506.
- [16] Liu N, Yang X, Zhang J, et al. Room-temperature excitonic nanolaser array with directly grown monolayer WS₂ [J]. *ACS Photonics*, 2023, 10(1): 283-289.

Optimization of structural parameters of Si₃N₄/WS₂/Al₂O₃ sandwich nanolaser

Liu Ning^{1,2,3}, Zhou Guyu⁴, Yang Xi^{1,2,3}, Xu Jipeng^{1,2,3}, Hong Qilin^{1,2,3}, Huang Xianyan^{1,2,3}, Zhang Jianfa^{1,2,3}, Liu Ken^{1,2,3*}, Zhu Zhihong^{1,2,3*}

(1. College of Advanced Interdisciplinary Studies, National University of Defense Technology, Changsha 410073, China;

2. Hunan Provincial Key Laboratory of Novel Nano-Optoelectronic Information Materials and Devices, National University of Defense Technology, Changsha 410073, China;

3. Nanhu Laser Laboratory, National University of Defense Technology, Changsha 410073, China;

4. Satellite Maritime Tracking & Control Department, Jiangyin 214400, China)

Abstract:

Objective High-performance on-chip nanolasers are very important for the development of communication, sensing, quantum and so on. On-chip nanolasers can be realized by integrating layered two-dimensional (2D) transition metal chalcogenides (TMDs) with optical microcavities. However, the integration of traditional 2D materials and microcavities is achieved by transfer methods, which limits the scale fabrication of on-chip nanolasers. Based on the above background, we propose a prototype of a TMDs-based microcavity nanolaser array prepared by direct growth method. High optical confinement factor in nanolasers can ensure a larger mode gain and a lower laser threshold. It is necessary to analyze the influence of various geometric parameters on the optical confinement factor of nanolaser by simulation and to optimize the structure, so as to lay a certain theoretical foundation for high-performance nanolasers that can be prepared on a large scale in integrated optical chips.

Methods Suspended silicon nitride (Si₃N₄) microdisk resonators with high quality factor were prepared using complementary metal oxide semiconductor (CMOS)-compatible fabrication process; Different from traditional transfer methods to realize the integration of 2D material and microcavity, we propose to use physical vapor deposition (PVD) method to directly grow monolayer tungsten sulfide (WS₂) on the surface of Si₃N₄ microdisk as gain material, realizing the conformal covering of the microdisk; In order to ensure that monolayer WS₂ can work stably under the pump of a laser, and to ensure a larger confinement factor in the monolayer gain material, the method of atomic layer deposition (ALD) was used to deposit alumina (Al₂O₃) with a certain thickness, and a nanolaser with sandwich structure Si₃N₄/WS₂/Al₂O₃ was formed; A simplified 3D simulation model of the nanolaser was constructed in Comsol software, and the effects of Al₂O₃ coating thickness T , Si₃N₄ microdisk

diameter D and thickness H on the optical confinement factor were analyzed; The devices were characterized by fluorescence and scanning electron microscopy.

Results and Discussions When constructing the simulation model, the silicon oxide (SiO_2) pillar structure and the circular notch of monolayer WS_2 caused by the SiO_2 pillar are omitted (Fig.2); The effects of Al_2O_3 coating thickness T (Fig.4), Si_3N_4 microdisk diameter D (Fig.6) and thickness H (Fig.7) on the optical confinement factor were analyzed. Within the range of selected parameters, the optical confinement factor first increases and then decreases with the increase of Al_2O_3 coating thickness T and Si_3N_4 microdisk diameter D , the decrease of the thickness H of the Si_3N_4 microdisk can also significantly increase the optical confinement factor of the nanolaser; The feasibility of this direct growth method was demonstrated by fluorescence and scanning electron microscopy after monolayer WS_2 was grown onto the Si_3N_4 microdisk (Fig.8); After the deposition of completion of Al_2O_3 , time-space images of the nanolaser above and below the threshold were shown (Fig.9).

Conclusions Nanolaser with a sandwich structure $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{WS}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ was proposed. The preparation process of the sandwich nanolaser was expounded. Suspended Si_3N_4 microdisk resonators with high quality factor were prepared using CMOS-compatible fabrication process, PVD method was used to directly grow monolayer WS_2 on the surface of Si_3N_4 microdisk as gain material, and ALD method was adopted to deposit Al_2O_3 with a certain thickness after monolayer WS_2 was grown. Thus, the nanolaser with a sandwich structure $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{WS}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ was formed; In the simulation software, the geometry of the nanolaser was simplified and the parameters were simulated and optimized, the effects of Al_2O_3 coating thickness T , Si_3N_4 microdisk diameter D and thickness H on the optical confinement factor were analyzed. Within the range of selected parameters, the optical confinement factor first increases and then decreases with the increase of Al_2O_3 coating thickness T and Si_3N_4 microdisk diameter D , the decrease of the thickness H of the Si_3N_4 microdisk can also significantly increase the optical confinement factor of the nanolaser; The characterization results of some devices were displayed, which lays a good simulation foundation for the further optimization of device parameters in the later period, and has certain guiding significance for the large-scale preparation of high-performance nanolasers in the field of optical communication and so on.

Key words: nanophotonics; nanolaser; structural simulation; micro-nano processing; two-dimensional material; physical vapor deposition

Funding projects: National Natural Science Foundation of China (12274462); Hunan Provincial Science and Technology Department (2017RS3039, 2018JJ1033)