arXiv:2301.03897v1 [cond-mat.mes-hall] 10 Jan 2023

高 Q 混合六方氮化硼/Si_3N_4 谐振器的机械模式成像

David Jaeger[†,‡] Francesco Fogliano[†] Thibaud Ruelle[†] Aris Lafranca[‡] Floris Braakman[†] 和 Martino Poggio[*,†,‡]

†巴塞尔大学物理系，瑞士巴塞尔 *4056*

‡瑞士纳米科学研究所，巴塞尔大学，瑞士巴塞尔 *4056*

电子邮箱：martino.poggio@unibas.ch

摘要

我们对由六方氮化硼制成、悬置于高应力 Si_3N_4 薄膜上的二维鼓膜谐振器的机械模式进行了成像和表征。测量结果表明，六方氮化硼谐振器的多个模式与 Si_3N_4薄膜的模式之间存在杂化。测得的共振频率和模式空间分布与基于理想化几何结构的有限元模拟结果一致。热运动光谱显示，六方氮化硼鼓膜模式与质量更大、品质因数更高的 Si_3N_4 薄膜模式的杂化程度不同，其品质因数和运动质量可能因此发生数量级的变化。这一效应可用于设计混合鼓膜／薄膜模式，使其兼具二维材料较低的运动质量和 Si_3N_4 薄膜较高的品质因数，应用于光机械或传感领域。

正文

二维材料使得制造具有高长宽比、极低质量和高共振频率的纳米机械谐振器成为可能。[1–4] 它们具有卓越的力学性质，例如极高的断裂强度和杨氏模量。[5] 由于具有独特的电子、[6,7]磁性[8,9] 和光学[10,11] 特性，以及将这些材料组合成层状异质结构的潜力，各类二维材料如今都受到广泛研究。[12] 已知六方氮化硼（hBN）的力学性质与石墨烯相近，[13] 但与石墨烯及其他二维材料不同，它具有近 6 eV 的大带隙，[14] 因此是一种在可见光和近红外范围内吸收率较低的透明绝缘体。[15] 研究还表明，hBN 中存在明亮且稳定的量子发射体，[16] 它们与晶格运动之间存在应变耦合。[17,18] 这些性质使 hBN 成为光机械器件以及集成到高精细度光学腔中的理想候选材料。[19]

大多数基于悬空二维材料薄片的器件，都是通过直接剥离[1,20] 或干法转印到预图案化衬底上制成的。[21] 由于基底较厚，而且通常无法从两侧进行光学探测，这些样品不适合与微尺度光学腔集成到膜内腔（MIM）结构中。[22–24] 此外，对这类器件进行机械模式成像后发现，这些转移技术会对振型产生不利影响，并可能损害谐振器的力学性质；这是因为它们会在薄片中引入非均匀应力。[2,25,26] 除了降低器件的整体性能和可重复性之外，这对需要经过校准的振型的传感应用也会造成问题。[25] 由化学气相沉积生长的二维材料制成的悬空器件采用湿法转移技术制备，[27] 但它们通常存在许多褶皱、裂纹或其他缺陷，对最终机械谐振器造成的影响程度与上述情况相近。[28,29]

在本研究中，我们采用湿法转移技术，将剥离得到的

六方氮化硼薄片（图1（a））放置在 Si_3N_4 薄膜的孔洞上方，从而制成可从两侧进行光学观测的薄型器件（图1（b））。我们通过测量热模态谱和详细的空间模态形状，对这种六方氮化硼/Si_3N_4 机械谐振器进行表征。我们发现，其振型与基于理想化几何结构的 COMSOL Multiphysics 模拟结果吻合良好。最后，我们探究 Si_3N_4 薄膜的机械模式与六方氮化硼鼓膜的机械模式之间的杂化如何影响后者的力学性质。

虽然此前已有研究观察到二维材料谐振器与下方 Si_3N_4 膜之间的杂化，[30,31] 但我们在此重点关注品质因数 Q 和有效质量 (m^*) 的变化。在我们的样品中，下方的 Si_3N_4 膜的 Q 远高于六方氮化硼鼓膜。因此发生了杂化，Si_3N_4 膜将其力学性质赋予六方氮化硼鼓膜的振动模式，这有望应用于传感应用[32]以及功能化机械系统的设计。

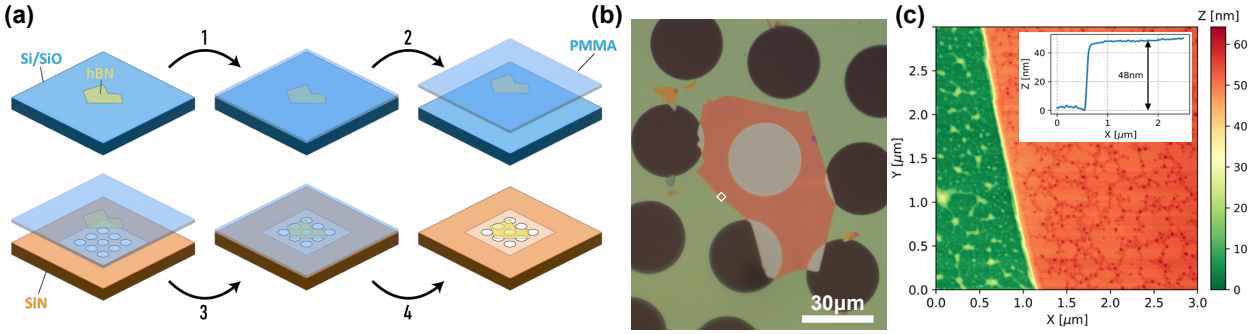


图1：(a) 样品制备流程。首先，将六方氮化硼薄片剥离并转移到 Si/SiO_2 基底上，然后在步骤1中旋涂聚甲基丙烯酸甲酯。在步骤2中，去除氧化层，释放出嵌有六方氮化硼薄片的聚甲基丙烯酸甲酯层。在步骤3中，使该聚甲基丙烯酸甲酯层与 Si_3N_4 膜接触，从而制成六方氮化硼鼓式谐振器。最后，在步骤4中，通过溶剂清洗去除聚甲基丙烯酸甲酯。(b) 完成后的样品照片。(c) 对 (b) 中小白色矩形所示区域进行的原子力显微镜测量，测得薄片厚度为48 nm。

我们的器件制备始于将剥离得到的六方氮化硼薄片（hq-graphene）置于带有 300 nm 氧化层的 Si/SiO_2基底上。六方氮化硼在聚二甲基硅氧烷上的光学对比度较差，而聚二甲基硅氧烷通常用于印章转印技术。[33] 然而，在 Si/SiO_2 基底上，可以

仔细检查并挑选这些薄片，从而找到没有缺陷、台阶或褶皱的薄片。随后在 Si/SiO_2 芯片上旋涂一层聚甲基丙烯酸甲酯（PMMA），再将芯片置于 2 M 氢氧化钠溶液中去除氧化层。由此形成一层漂浮的聚甲基丙烯酸甲酯薄膜，六方氮化硼薄片附着在其底面（见图 1 (a) 步骤 1-2）。我们发现，室温下缓慢刻蚀 SiO_2，得到的聚甲基丙烯酸甲酯薄膜比常用的高温快速刻蚀工艺更加平整、洁净。经过数次漂洗，以去离子水替换氢氧化钠溶液后，将聚甲基丙烯酸甲酯/六方氮化硼薄膜转移到另一个容器中，使其漂浮在目标基底上方。该基底是一层化学计量比的 Si_3N_4 薄膜（应力为 900 MPa，Norcada），厚 200 nm，横向尺寸为 300 µm × 300 µm，并以网格形式设有直径为 30 µm 的孔。使用 Crystalbond 将 Si_3N_4 薄膜粘在金属支架上，以免转移过程中漂走或移动。为了将聚甲基丙烯酸甲酯薄膜定位在 Si_3N_4 芯片上方，我们在光学显微镜下使用微操纵器装置。将六方氮化硼薄片定位在 Si_3N_4 薄膜的目标孔上方时，缓慢移除水，直至薄片落在孔上（图 1 (a) 步骤 3）。将器件放置过夜使其干燥，随后先用丙酮、再用异丙醇在 50 °C 下各处理 30 分钟，以去除聚甲基丙烯酸甲酯（图 1 (a) 步骤 4）。最后，将样品放入紫外臭氧清洗机中处理 10 分钟，以去除有机残留物。

样品的表征在室温真空腔（压力为 $<10^{-4}$mbar）中进行，该真空腔为改装的迈克耳孙干涉仪提供光学通路（见参考文献34）。使用单频二极管激光器（630 nm）通过平衡探测方案检测六方氮化硼鼓膜的运动。通过反馈回路稳定干涉仪参考臂的长度，使干涉仪在整个测量过程中保持稳定并具有最高灵敏度。通过压电激振器以共振方式激励样品，使其振幅达到数个 nm，同时使用锁相放大器（Zurich HF2LI）记录解调信号，从而测量机械响应。压电扫描器堆栈（Attocube ANSxy50）可用于绘制样品反射强度的分布，并

如图2所示，对机械模式进行成像。

模式成像不仅能帮助我们深入了解薄膜的缺陷（褶皱、皱纹、非均匀应变等）及其对振型的影响，还能识别频谱中发现的每个共振峰对应的模态。当共振谱无法被理论很好地预测时，或像本研究这样因模态杂化而变得复杂时，这一方法尤其有用。

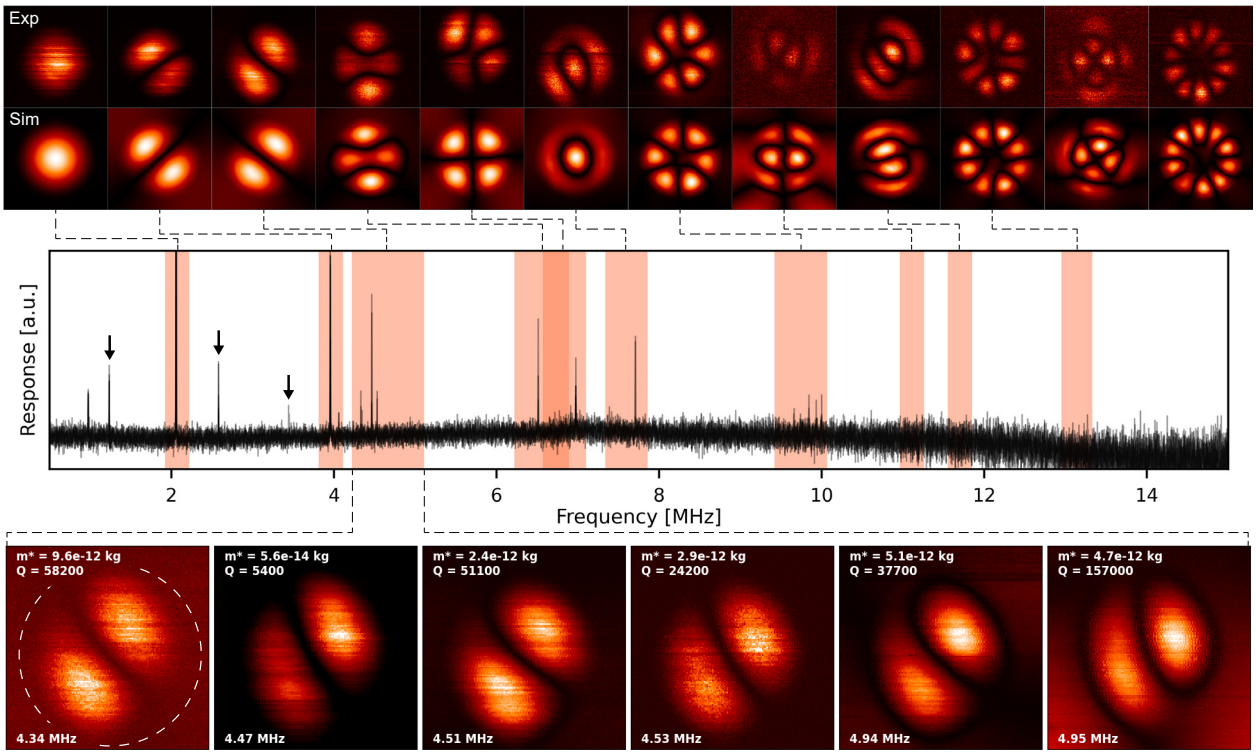


图2：图1（b）所示样品的振型图像和频谱。第一行显示测得的振型图像，第二行显示使用 COMSOL 模拟的振型图像。由于往往不止一个模态的振型图像与之匹配，因此这些模态以阴影区域表示，而非对应于下方热谱中的某个特定峰。最后两幅振型图像超出了所示热谱的频率范围，因此未标出阴影区域。箭头标出了未与任何六方氮化硼鼓膜模态杂化的 Si_3N_4 薄膜模态，其中第一个是基频 Si_3N_4 模态。最后一行展示了阴影区域之一中一系列表面上相同的模式的示例。 m^*、品质因数 Q 和共振频率显示在六张图中的每一张上。

我们对图1（b）所示样品的热谱中可见的多种机械模式进行了表征和成像（图2）。这些数据有助于了解其

共振谱，并证实振型（图2第一排图像）与 COMSOL 仿真结果（图2第二排图像）相符。我们还可以利用热谱表征相关模式的力学性质，尤其是其 m^* 和品质因数 Q。例如，图 3（a）展示了六方氮化硼鼓膜在约 2 兆赫处基模的热谱。理论有效质量 $m^*_{th} = 1.89 \times 10^{-14}$ kg 与测得的 $m^* = 1.71 \times 10^{-14}$kg 一致。计算理论值时，我们假设六方氮化硼的密度为 $\rho_{hBN} = 2100$kg m^{-3}，并假设 m^* 与几何质量 m 之比为 $m^*/m = 0.265$。[35] 鼓膜的直径为 $d = 30$μm，厚度为 $t = 48$nm（图1（c））。拟合热谱时，我们采用功率谱密度

$$S_{xx}(\omega) = \frac{2\Gamma k_B T}{m^*((\omega_0^2 - \omega^2)^2 + \Gamma^2\omega^2)} \tag{1}$$

其中，$\omega/2\pi$ 为频率（共振时为ω_0），$\Gamma = \omega_0/Q$ 为线宽，T 为温度，k_B 为玻尔兹曼常数。我们假设样品与周围热浴处于热平衡状态。选择光功率（~ 100μW）是为了使六方氮化硼鼓膜的共振频率产生的偏移可以忽略不计。

我们测得六方氮化硼鼓膜基模的品质因数 $Q = 6250$ 。据我们所知，尚无基于二维材料且在室温下具有更高品质因数 Q 的器件。通常，此类器件的品质因数 Q 范围为 $10^1 - 10^2$。[1,3,20,29,36,37]

我们经常会发现，在图2阴影区域所示的频率区间内，同一种振型会出现多个副本。图2底部展示了这类具有可观测热运动的模态序列示例。我们认为，这些副本的出现是由于六方氮化硼鼓膜模态与若干频率接近的 Si_3N_4 薄膜模态发生了杂化（见图 S3 (c)）。我们再次采用 COMSOL 仿真，以进一步了解组合系统（图 S1）。模拟预测了多种杂化模式，其中六方氮化硼鼓膜预期具有的 Ince-Gaussian 型模态与 Si_3N_4 薄膜的模态相结合。[38] 与裸六方氮化硼鼓膜相比，这会产生数量多得多的模态，并且还会影响六方氮化硼鼓模式的旋转取向。

仔细观察图2底排可以发现，部分振型图像在鼓膜模态典型的双峰周围显示出运动（亮色），这暗示它们与周围的 Si_3N_4 薄膜发生了杂化。正如预期，品质因数最低的模态（第二幅图）在周围的 Si_3N_4薄膜中没有显示运动；而品质因数最高的模态（最后一幅图）则显示出强烈运动，甚至与六方氮化硼鼓膜的振型融合在一起。六方氮化硼鼓膜的基模预计不会发生杂化（图3(a)插图），因为它位于模态谱中 Si_3N_4 薄膜基模之后的一个频率间隙内（图2、图 S3 中的箭头）。相反，根据模拟，我们预计六方氮化硼鼓膜的高阶模态会与 Si_3N_4 薄膜的模态发生杂化。

为进一步研究这种杂化，我们提取了热谱中所有观测到的振型的 m^* 和品质因数 Q。我们还分别在液氮（77开尔文）和液氦（4开尔文）温度下进行了测量。样品在液氦浴低温恒温器（Cryomagnetics）中冷却，并按照参考文献39所述，使用光纤显微镜进行测量。

图3(b)展示了品质因数 Q 随共振频率的变化。在较小的频率区间内，往往有许多品质因数 Q 不同的振型，它们几乎排列成一条垂直线，代表一组振型，如图2底部所示。Si_3N_4 薄膜的室温品质因数 $Q = 1.8 \times 10^5$（见图S3(a)）远高于六方氮化硼鼓膜的基模品质因数（图3(a)）。在观测到的热谱中，振型图像与六方氮化硼鼓膜预期振型相符的那些谱（例如图2底排），我们发现其品质因数超过 1×10^5，几乎达到Si_3N_4 薄膜的数值。

如果我们在六方氮化硼鼓膜上检测到的运动与 Si_3N_4, 中的运动耦合，我们预计该杂化模态的 m^* 会增加，因为 Si_3N_4 薄膜是一个质量大得多的振子。如图3(c)所示，当我们改为考察 m^* 时，确实发现这些数值有所增加。室温下测得的数值（红色标记）

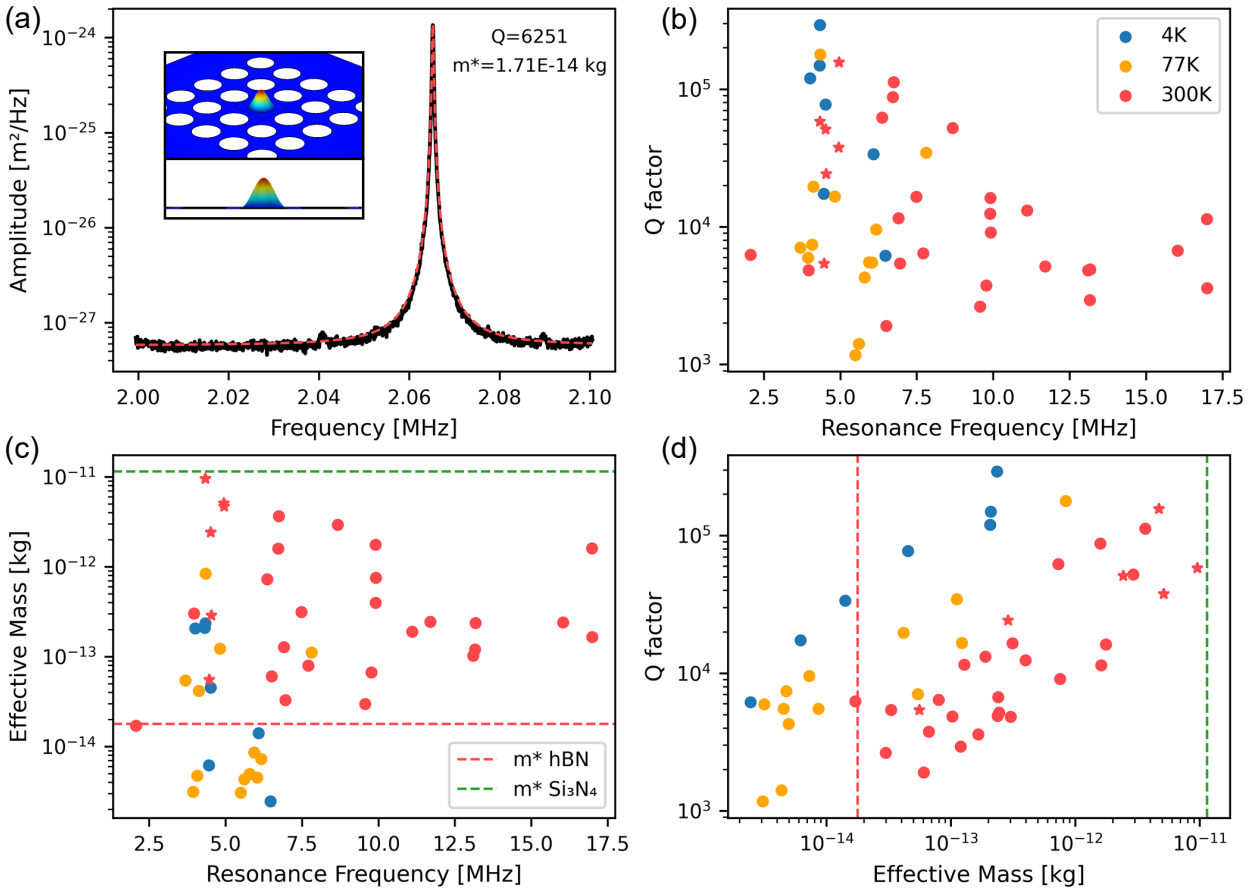


图3：（a）基模的热谱，红色为拟合曲线。拟合得出的品质因数 Q 和 m^* 标注在峰值右侧，左侧插图显示了使用 COMSOL 模拟的预期挠度。运动局限于覆盖中心孔的六方氮化硼中。（b）、（c）不同温度下所有观测到的模式的品质因数 Q 和 m^* 随共振频率的变化。图2底部所示的六种模式以星形标记表示。（d）品质因数 Q 随 m^*的变化。（c）、（d）中的虚线表示六方氮化硼和 Si_3N_4的 m^*_{th} 。

介于下限（红色虚线）和上限（绿色虚线）之间：下限对应于六方氮化硼鼓膜基模的 m^*_{th}，上限对应于 Si m^*_{th} N_3薄膜的$_4$。尽管这些限值只是估算值，尤其是对于圆形六方氮化硼鼓膜，其有效质量取决于所考察的模态，[35] 但这种表现符合我们对不同杂化程度的预期。如果绘制测得的品质因数 Q 与 m^* 的关系图（图3(d)），会发现品质因数 Q 较高的模态往往具有较高的 m^*，两者似乎相关。由此我们可以得出结论，通过杂化，Si_3N_4薄膜能够将其高品质因数传递给六方氮化硼，但代价是有效质量增加。为了

要解释在较低温度下向较低 m^* 的偏移，我们需要将冷却过程中谐振器几何形状的变化考虑在内。

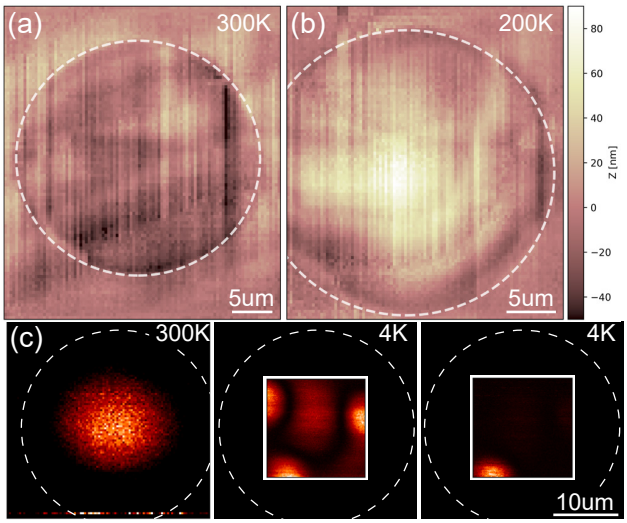


图4：(a)、(b) 根据反射强度提取的高度差分布图，显示了较低温度下的鼓胀效应。(c) 室温下六方氮化硼的基频振型（左），以及 4开尔文下鼓胀鼓膜的振型（中、右）。中间的图像显示了一种跨越大面积的复杂振型，无法观测到其热运动。右侧图像展示了一种更典型的振型，代表我们能够表征的振型（见图3）。虚线圆圈标示鼓膜边缘，最后两张图中的白色方框则标示 4开尔文下有限的扫描窗口。

已知块体六方氮化硼具有负热膨胀系数，[40] 因此，和石墨烯一样，我们有理由认为，这一性质在二维极限下仍会保留，甚至增强。[41]因此，我们预计薄膜在低温下会鼓起。虽然单层六方氮化硼中未观察到这种效应，[29] 但此处展示的样品并未薄到能够明确处于膜态；在膜态下，鼓膜预计会因贴附于下方基底的侧壁而保持张力。[2] 事实上，我们观察到了样品屈曲，如图4(a)和(b)中的反射强度图所示。虽然我们观察到品质因数 Q有所提高（图3），尤其是在比较有效质量相近的情况时，但这一效应不如其他已发表研究中的显著。[6,28,29,42] 由于鼓起发生后机械模式的性质会显著变化（见图4(c)），因此很难进行明确比较。例如，屈曲后不存在相应模式，因此我们无法观察基模品质因数随温度的变化。

模式随温度的变化，因为屈曲后不存在相应的模式。

观察图3可见， m^* 在较低温度下趋于较低值，甚至远低于六方氮化硼基模的预期值。这并不令人意外，因为振型图像显示，在鼓胀膜中，某些观测到的振型只有薄膜中面积小得多的部分参与运动（图4(c)）。与室温下不同，我们没有观察到 m^* 达到由 Si_3N_4 薄膜运动质量给出的上限。我们认为，这是因为无法观测到这些振型的热运动。热运动与 T 成正比，并与 m^* 和 ω 成反比（式1），因此低温下可观测光谱的范围受到限制。

总而言之，本文展示的器件具有优异的力学性质，其振型与理论预测一致，且在高阶振型下仍然如此。我们认为，这种良好性能最可能归因于制造工艺。Si/SiO_2基底有助于清晰观察薄片中的任何缺陷，而湿法转移使薄片能够轻柔地落在 Si_3N_4 薄膜上，从而避免鼓膜中出现非均匀应力。虽然厚度似乎不会影响类似器件的品质因数 Q，[1–3,19,20] 但我们器件较大的鼓膜直径可能会带来积极影响。[43] 另一个已知会影响品质因数 Q的因素是张力，[28] 据我们估计，我们样品中的张力并不高于类似已发表研究中的样品（见补充信息）。[2,6,29]

Si_3N_4 薄膜与六方氮化硼鼓膜之间的杂化不仅提高了六方氮化硼模态的品质因数 Q，还能选择不同的品质因数 Q 值（m^*），因为杂化会将预期的六方氮化硼模态分裂为多个杂化程度各异的副本。通过加入温度控制，应该能够像参考文献30、31中那样调节这种杂化。

在估算我们器件的灵敏度时，品质因数 Q 的提升并不足以抵消 m^* 的增加（图S2）；不过，已有研究展示了品质因数 Q 更高（或 m^*更低）的 Si_3N_4 薄膜，这可能使这种权衡更有利。[44] 这或许能够实现对机

械模式的利用，这些模式具有出色的特性，并兼具二维材料的诸多独特优势。

致谢

我们感谢巴塞尔大学物理系机械加工车间的 Sascha Martin 及其团队协助搭建实验装置。我们感谢阿尔高州和瑞士国家科学基金会（SNSF）通过 Ambizione资助（编号 PZ00P2-161284/1）和项目资助（编号 200020-178863），以及通过国家量子科学与技术研究中心（QSIT）提供的支持。

参考文献

(1) Bunch, J. S.; van der Zande, A. M.; Verbridge, S. S.; Frank, I. W.; Tanenbaum, D. M.; Parpia, J. M.; Craighead, H. G.; McEuen, P. L. 石墨烯片电机谐振器。*Science* **2017年**, *315*, 490–493 。

(2) Zheng, X.-Q.; Lee, J.; Feng, P. X.-L. 六方氮化硼纳米机械谐振器及其运动的空间可视化。*Microsystems & Nanoengineering* **2017年**, *3*, 17038 。

(3) Castellanos-Gomez Andres,; van Leeuwen Ronald,; Buscema Michele,; van der Zant Herre S. J.,; Steele Gary A.,; Venstra Warner J., 单层二硫化钼机械谐振器。《先进材料》2013年，25，6719–6723。

(4) Steeneken, P. G.; Dolleman, R. J.; Davidovikj, D.; Alijani, F.; van der Zant, H. S. J. 二维材料薄膜的动力学。《二维材料》2021年，8，042001。

(5) Lee, C.; Wei, X.; Kysar, J. W.; Hone, J. 单层石墨烯的弹性性质和本征强度测量。*Science* **2008年**, *321*, 385–388。

(6) Chen, C.; Rosenblatt, S.; Bolotin, K. I.; Kalb, W.; Kim, P.; Kymissis, I.; Stormer, H. L.; Heinz, T.F.; Hone,J.采用电学读出的单层石墨烯纳米机械谐振器性能。《自然·纳米技术》**2009年**, *4*, 861–867。

(7) Chen, C.; Lee, S.; Deshpande, V. V.; Lee, G.-H.; Lekas, M.; Shepard, K.; Hone, J. 具有可调频率的石墨烯机械振荡器。《自然·纳米技术》2013年，8，923–927。

(8) Gong, C.; Li, L.; Li, Z.; Ji, H.; Stern, A.; Xia, Y.; Cao, T.; Bao, W.; Wang, C.; Wang, Y.; Qiu, Z. Q.; Cava, R. J.; Louie, S. G.; Xia, J.; Zhang, X. 在二维范德华晶体中发现本征铁磁性。《Nature》2017年，546，265–269。

(9) Huang, B.; Clark, G.; Navarro-Moratalla, E.; Klein, D. R.; Cheng, R.; Seyler, K. L.; Zhong, D.; Schmidgall, E.; McGuire, M. A.; Cobden, D. H.; Yao, W.; Xiao, D.; Jarillo- Herrero, P.; Xu, X. 范德华晶体中的层依赖铁磁性，直至单层极限。《Nature》2017年，546，270–273。

(10) Splendiani, A.; Sun, L.; Zhang, Y.; Li, T.; Kim, J.; Chim, C.-Y.; Galli, G.; Wang, F. 单层二硫化钼中涌现的光致发光。《纳米快报》**2010年**，*10*，1271–1275。

(11) Srivastava, A.; Sidler, M.; Allain, A. V.; Lembke, D. S.; Kis, A.; Imamoğlu, A. 单层 WSe2 中的光学活性量子点。《自然·纳米技术》**2015年**，*10*，491–496。

(12) Novoselov, K. S.; Mishchenko, A.; Carvalho, A.; Castro Neto, A. H. 《二维材料》与范德华异质结构。*Science* **2016年**，*353*，aac9439。

(13) Falin, A.; Cai, Q.; Santos, E. J. G.; Scullion, D.; Qian, D.; Zhang, R.; Yang, Z.; Huang, S.; Watanabe, K.; Taniguchi, T.; Barnett, M. R.; Chen, Y.; Ruoff, R. S.; Li, L. H. 原子级薄氮化硼的力学性质及层间相互作用的作用。*Nature Communications* **2017年**, *8*,15815.

(14) Watanabe, K.; Taniguchi, T.; Kanda, H. 六方氮化硼单晶的直接带隙特性及紫外激光发射的证据。《自然·材料》**2004年**,*3*, 404–409 。

(15) Lee, S.-Y.; Jeong, T.-Y.; Jung, S.; Yee, K.-J. 六方氮化硼在可见光和近红外波段的折射率色散。*physica status solidi (b)* **2019年**，*256*，1800417。

(16) Tran, T. T.; Bray, K.; Ford, M. J.; Toth, M.; Aharonovich, I. 六方氮化硼单层的量子发射。《自然·纳米技术》**2016年**，*11*，37–41。

(17) Mendelson, N.; Doherty, M.; Toth, M.; Aharonovich, I.; Tran, T. T. 应变诱导的调控对六方氮化硼中量子发射体光学特性的影响。《先进材料》**2020年**，*32*，1908316。

(18) Lazić, S.; Espinha, A.; Yanguas, S. P.; Gibaja, C.; Zamora, F.; Ares, P.; Chhowalla, M.; Paz, W. S.; Burgos, J. J. P.; Hernández-Mínguez, A.; Santos, P. V.; van der Meulen, H. P. 六方氮化硼原子缺陷的动态调谐非经典光发射。《通讯·物理》**2019年**，*2*，1–8。

(19) Shandilya, P. K.; Fröch, J. E.; Mitchell, M.; Lake, D. P.; Kim, S.; Toth, M.; Behera, B.; Healey, C.; Aharonovich, I.; Barclay, P. E. 六方氮化硼腔光力学。《纳米快报》2019年，19，1343–1350。

(20) Lee, J.; Wang, Z.; He, K.; Shan, J.; Feng, P. X.-L. 高频二硫化钼纳米机械谐振器。《ACS纳米》2013年，7，6086–6091。

(21) Castellanos-Gomez, A.; Buscema, M.; Molenaar, R.; Singh, V.; Janssen, L.; van der Zant, H. S. J.; Steele, G. A. 通过全干式黏弹性印章法确定性转移二维材料。《二维材料》《二维材料》2014, *1*,011002 。

(22) Ruelle, T.; Jaeger, D.; Fogliano, F.; Braakman, F.; Poggio, M. 用于混合光力学的可调谐光纤法布里–珀罗腔，在 4开尔文下稳定。《科学仪器评论》《科学仪器评论》**2022**, *93*, 095003 。

(23) Flowers-Jacobs, N. E.; Hoch, S. W.; Sankey, J. C.; Kashkanova, A.; Jayich, A. M.; Deutsch, C.; Reichel, J.; Harris, J. G. E. 基于光纤腔的光力学器件。《应用物理快报》**2012年**，*101*，221109。

(24) Rochau, F.; Sánchez Arribas, I.; Brieussel, A.; Stapfner, S.; Hunger, D.; Weig, E. M. 超高精细度光纤微腔中的动态反作用。*Physical Re-view Applied* **2021**，*16*，014013。

(25) Davidovikj, D.; Slim, J. J.; Bueno, S. J. C.; van der Zant, H. S. J.; Steeneken, P. G.; Venstra, W. J. 石墨烯纳米鼓的运动可视化。《纳米快报》**2016年**，*16*，2768–2773。

(26) Garcia-Sanchez, D.; van der Zande, A. M.; Paulo, A. S.; Lassagne, B.; McEuen, P. L.; Bachtold, A. 悬空石墨烯片的机械振动成像。《纳米快报》**2009年**，*8*，1399–1403。

(27) Reina, A.; Jia, X.; Ho, J.; Nezich, D.; Son, H.; Bulovic, V.; Dresselhaus, M. S.; Kong, J. 通过化学气相沉积在任意基底上制备大面积少层石墨烯薄膜。《纳米快报》**2009年**，*9*，30–35。

(28) van der Zande, A. M.; Barton, R. A.; Alden, J. S.; Ruiz-Vargas, C. S.; Whitney, W. S.; Pham, P. H. Q.; Park, J.; Parpia, J. M.; Craighead, H. G.; McEuen, P. L. 单层石墨烯谐振器的大规模阵列。《纳米快报》**2010年**，*10*，4869–4873。

(29) Cartamil-Bueno, S. J.; Cavalieri, M.; Wang, R.; Houri, S.; Hofmann, S.; vander Zant, H. S. J. 化学气相沉积单层六方氮化硼谐振器的机械表征与清洁。《*npj*二维材料与应用》**2017年**，*1*，16。

(30) Schwarz, C.; Pigeau, B.; Mercier de Lépinay, L.; Kuhn, A. G.; Kalita, D.; Bendiab, N.; Marty, L.; Bouchiat, V.; Arcizet, O. 耦合石墨烯纳米机械系统中对正则模展开的偏离。*Physical Review Applied* **2016年**, *6*, 064021。

(31) Singh,R.; Sarkar, A.; Guria, C.; Nicholl, R. J.; Chakraborty, S.; Bolotin, K. I.; Ghosh, S. 石墨烯–氮化硅混合谐振器中的巨大可调机械非线性。《纳米快报》**2020年**, *20*, 4659–4666。

(32) Reiche, C. F.; Körner, J.; Büchner, B.; Mühl, T. 为基于机械振荡的传感器引入一种共振检测概念。*Nanotechnology* **2015年**, *26*, 335501。

(33) Zheng, X.-Q.; Lee, J.; Feng, P. X.-L. 具有温度依赖性多模态运行特性的六方氮化硼（h-BN）纳米机械谐振器。2015年 Transducers - 2015年第18届国际固态传感器、执行器与微系统会议（TRANSDUCERS）。2015年；第1393–1396页。

(34) Barg, A.; Tsaturyan, Y.; Belhage, E.; Nielsen, W. H. P.; Møller, C. B.; Schliesser, A. 使用激光测量并成像纳米机械运动。《Applied Physics B》*Applied Physics B***2017年**, *123*, 8。

(35) Hauer, B. D.; Doolin, C.; Beach, K. S. D.; Davis, J. P. 纳米/微机械谐振器热机械标定的一般方法。《Annals of Physics》*Annals of Physics***2013年**, *339*, 181–207。

(36) van Leeuwen, R.; Castellanos-Gomez, A.; Steele, G. A.; van der Zant, H. S. J.; Ven- stra, W. J. 原子级薄二硫化钼纳米机械谐振器的时域响应。《应用物理快报》*Applied Physics Letters* **2014**, *105*, 041911。

(37) Kramer, E.; van Dorp, J.; van Leeuwen, R.; Venstra, W. J. 纳米机械谐振器中的应变依赖阻尼

来自薄层二硫化钼晶体。《应用物理快报》**2015年**，*107*，091903。

(38) Bandres, M. A.; Gutiérrez-Vega, J. C. 傍轴波动方程与稳定谐振器的 Ince–Gaussian 模式。《美国光学学会志 *A*》**2004**,*21*,873。

(39) Högele, A.; Seidl, S.; Kroner, M.; Karrai, K.; Schulhauser, C.; Sqalli, O.; Scrimgeour, J.; Warburton, R. J. 用于低温光谱学的光纤共聚焦显微镜。《科学仪器评论》**2008**, *79*, 023709。

(40) Paszkowicz, W.; Pelka, J.; Knapp, M.; Szyszko, T.; Podsiadlo, S. 六方氮化硼在 10–297.5 K 温度范围内的晶格参数和各向异性热膨胀。《应用物理 *A*》**2002**, *75*, 431–435。

(41) Yoon, D.; Son, Y.-W.; Cheong, H. 通过拉曼光谱测量石墨烯的负热膨胀系数。《纳米快报》**2011年**，*11*，3227–3231。

(42) Morell, N.; Reserbat-Plantey, A.; Tsioutsios, I.; Schädler, K. G.; Dubin, F.; Koppens, F. H. L.; Bachtold, A. 基于 WSe2 单层的高品质因数机械谐振器。《纳米快报》**2016年**，*16*，5102–5108。

(43) Barton, R. A.; Ilic, B.; van der Zande, A. M.; Whitney, W. S.; McEuen, P. L.; Parpia, J. M.; Craighead, H. G. 石墨烯机械谐振器阵列中尺寸依赖的高品质因数。《纳米快报》**2011年**，*11*，1232–1236。

(44) Tsaturyan, Y.; Barg, A.; Polzik, E. S.; Schliesser, A. 通过软夹持和耗散稀释实现的超相干纳米机械谐振器。《自然·纳米技术》**2017年**，*12*，776–783。

arXiv:2301.03897v1 [cond-mat.mes-hall] 10 Jan 2023

补充信息：

混合六方氮化硼/Si_3N_4薄膜谐振器的机械模式成像

David Jaeger, †,‡ Francesco Fogliano, † Thibaud Ruelle, † Aris Lafranca, ‡ Floris Braakman, † 以及 Martino Poggio*,†,‡

†巴塞尔大学物理系，瑞士巴塞尔 *4056*

‡巴塞尔大学瑞士纳米科学研究所，瑞士巴塞尔 *4056*

电子邮箱：martino.poggio@unibas.ch

COMSOL 仿真

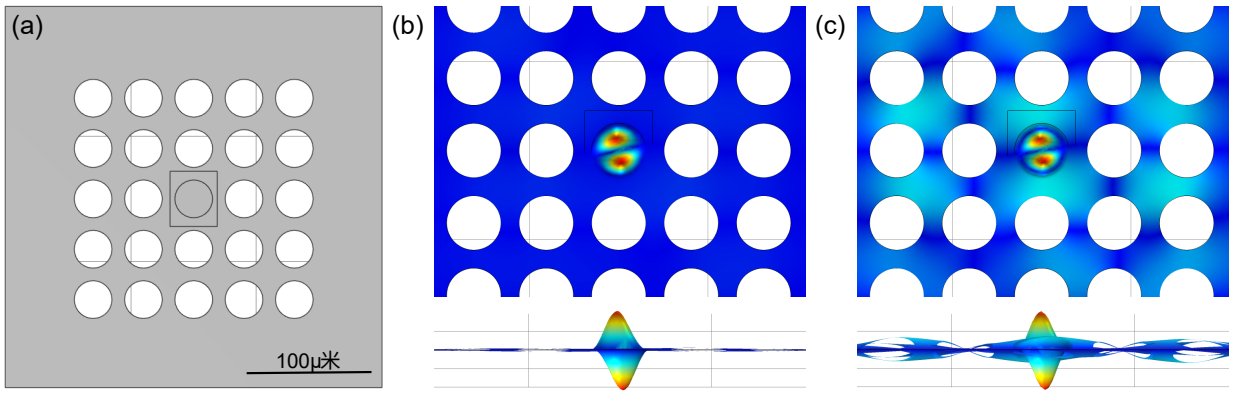


图 S1：（a）用于模拟的简化几何结构。（b）、（c）六方氮化硼鼓膜模态的两个副本的俯视图和侧视图，它们与 Si_3N_4 薄膜的杂化程度不同。

在 COMSOL 仿真的几何模型中，我们将六方氮化硼薄片近似为覆盖 Si_3N_4 薄膜中心孔的矩形；由于 Si_3N_4 薄膜形状明确，因此可以准确复现。根据正文图 1(c) 所示的原子力显微镜测量结果，薄膜厚度为 200 nm，薄片厚度为 48 nm。

文献中报道的六方氮化硼杨氏模量值差异很大；[S1, S2] 我们的模拟采用了参考文献 S1 报道的平均值 392 GPa。随后，我们通过调整薄片的预张力，使六方氮化硼鼓膜基模的模拟频率与实验观测值相匹配，得到 0。1 N/m。化学计量比 Si_3N_4 薄膜的应力经过设计，为 900 MPa。

计算振型时将其视为壳体而非薄膜，以考虑弯曲刚度；鉴于六方氮化硼薄片的厚度，这一因素预计会发挥作用。[S1] 我们通过使 Si_3N_4薄膜的正方形形状和六方氮化硼薄片的矩形形状偏离 1%，在系统中引入不对称性。

力灵敏度和质量灵敏度估算

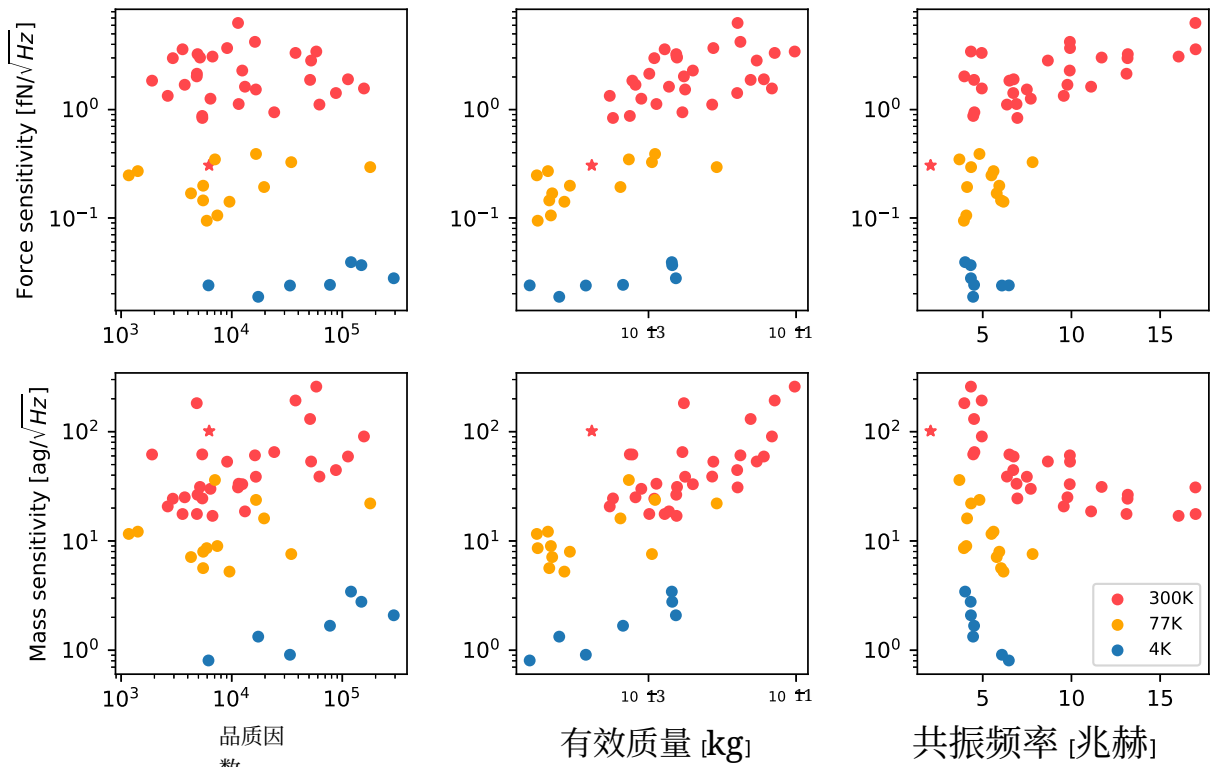


图 S2：上排（下排）显示了力灵敏度（质量灵敏度）与 Q、 m^* 和共振频率的关系。星形标记表示六方氮化硼鼓膜的基模。

力　　以 $[N/\sqrt{Hz}]$ 和 $[kg/\sqrt{Hz}]$ 为单位的位移和质量灵敏度由下式给出

$$S_f^{-1/2}(\omega) = \sqrt{4k_B T \Gamma m^*} \tag{1}$$

$$S_m^{-1/2}(\omega) = \sqrt{2k_B T \Gamma m^*}\frac{2}{x_0 \omega_0^2} \tag{2}$$

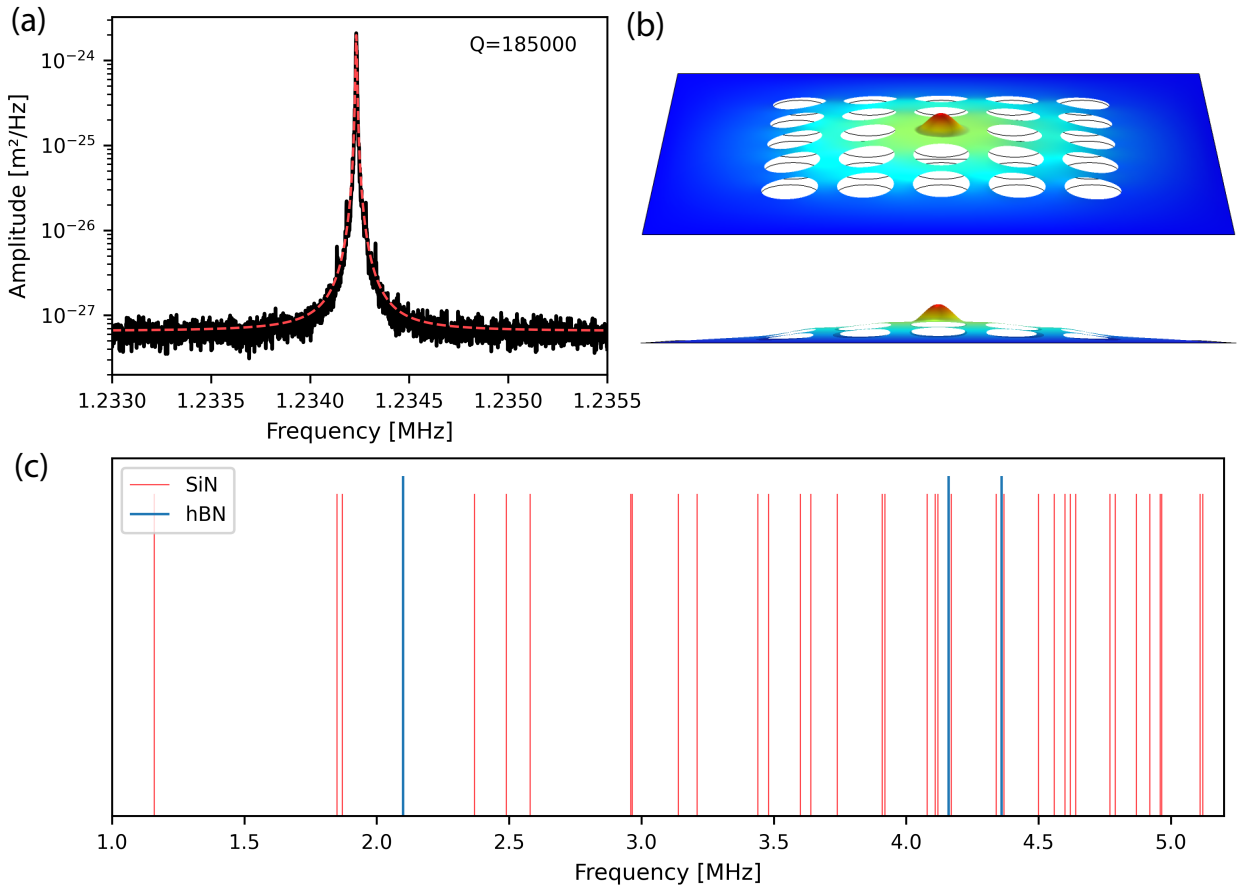
与 x_0 振　　荡振幅（对于图 S2 所示结果，假设其为 1 nm）。

图 S2 绘制了六方氮化硼鼓膜各机械模式对应的灵敏度。对于室温下的力灵敏度，预测基模具有最佳数值。这表明，对于我们的系统，Q 的提升不足以抵消

m^* 的增加，因为六方氮化硼的基模具有最低的有效质量。质量灵敏度还包含一个额外项 $\frac{2}{x_0\omega_0^2}$，因此对频率的依赖性更强；但对于 Q 和 m^* 值较高的强杂化模式，灵敏度并未提升。

降至 77开尔文，再降至 4开尔文，不仅因其温度依赖性而提高了灵敏度，也因为鼓起膜中较小模式的 m^* 有所降低。

Si_3N_4 薄膜的力学性质



图S3：(a) Si_3N_4 薄膜基模的热运动。(b) (a) 中所示模式的 COMSOL 仿真。(c) 孤立 Si_3N_4 薄膜（橙色）和孤立 hBN 鼓膜（蓝色）的机械模式预测频率。

Si_3N_4 薄膜的基模在室温下的品质因数 Q 为 1.8×10^5。该模式的频率几乎只有六方氮化硼基模的一半，因此预计不会发生杂化。这表明，正文中展示的杂化模式的最高品质因数 Q （约为 1.5×10^5 ）与我们测得的该样品最高值相差不远。图 S3(b) 展示了 Si_3N_4 薄膜基模的模拟振型。除了预期的整体形状外，我们还可以观察到，六方氮化硼仍会与该模式相互作用，凭借其不同的力学性质有效增大振幅。图 S3(c) 展示了频率间隔排列得有多密集

对于 Si_3N_4 薄膜，其频率超过 3 兆赫，这说明六方氮化硼鼓膜的基模并未发生混成，而高阶模态则呈现不同程度的混成。

参考文献

(S1) Zheng, X.-Q.; Lee, J.; Feng, P. X.-L. 具有空间可视化运动的六方氮化硼纳米机械谐振器。石墨烯片电机谐振器。*Microsystems & Nanoengineering* **2017年**，*3*，17038。

(S2) Cartamil-Bueno, S.J.; Cavalieri, M.; Wang, R.; Houri, S.; Hofmann, S.; van der Zant, H. S. J. 化学气相沉积单层六方氮化硼谐振器的机械表征与清洁。*2D Material and Applications* **2017年**，*1*，16。