用于过渡金属硫族化合物单层高效场增强的高阶连续域束缚态自支撑抗蚀剂超表面

Chih-Zong Deng[1], Sunhao Shi[2], Chun-Hao Chiang[1], Mu-Hsin Chen[1], Jui-Han Fu[2], Vincent Tung[2], 和 Ya-Lun Ho[1]*

[1]电子与光学材料研究中心，国立材料科学研究所（NIMS），日本茨城县筑波市并木 1-1，邮编 305-0044

[2]东京大学工学部化学系统工程系，日本东京文京区本乡 7-3-1，邮编 113-8656

关键词。

悬空超表面，薄膜，连续域束缚态，过渡金属二硫族化物单层，光与物质相互作用

摘要。

增强二维半导体（例如过渡金属二硫族化物单层）中的光–物质耦合，是纳米光子学领域的一项核心挑战，因为其原子级厚度限制了光与其相互作用的体积。在此，我们展示了一阶

悬空超表面支持的准连续域束缚态（准连续域束缚态）可产生极强的表面场增强，从而实现与二硫化钨（WS_2）单层的高效耦合。我们在氮化硅薄膜上制备了三角晶格聚合物图案，以实现这些高阶模式。模拟结果表明，在放置 WS_2 单层的顶表面处，一阶准连续域束缚态的场增强远强于零阶模式。光致发光（PL）测量证实，一阶准连续域束缚态的光致发光增强因子高达 127，是零阶准连续域束缚态的六倍多。这些结果表明，悬空超表面中的高阶连续域束缚态为调控二维半导体中的光–物质相互作用提供了一条强有力的途径，可用于先进的纳米光子学和量子光子学应用。

1. 引言

二维（2D）过渡金属二硫属化物（TMDs），例如 WS_2 和 MoS_2单层，已成为推动下一代光电子与量子技术发展的核心平台。[1, 2] 其原子级薄层结构为极致微型化与集成提供了独特机遇，而强激子共振和谷选择光学选择定则则为开发基于激子的器件开辟了道路。这些特性推动了人们对基于 TMD 的光探测器、发光器件和量子发射体的深入研究，使其成为未来信息与通信技术的关键构件。[3-8] 然而，光与单层半导体之间相互作用体积本征较弱，是一项主要瓶颈。由于过渡金属硫族化合物单层只有原子级厚度，其吸收与发射截面远小于块体半导体，严重限制了其集成到光学器件后的效率。要克服这一限制，就需要精心设计光子环境，以在纳米尺度上增强并调控光–物质相互作用。

纳米光子谐振器和超表面为应对这一挑战提供了一种颇具吸引力的解决方案。通过将电磁场限制在亚波长区域并增强其强度，谐振光子结构可以弥补过渡金属硫族化合物单层光学体积较小的不足。这一策略已在多种场景中得到验证，包括光子晶体、[4]等离激元纳米天线、[6] 以及介电超表面。[9] 在这些方法中，介电超表面尤其具有发展前景，因为它们适用于大面积有源区域，光学损耗低，并且能够支持一系列具有定制光谱和空间特性的共振模式。

在这一背景下，介电超表面支持的连续谱束缚态（BIC）近来成为增强光–物质相互作用的一种尤为强大的概念。[10, 11]BIC 是不辐射的模式态，即使嵌入辐射连续谱中，也能完美地限制在光子系统内。当受到对称性破缺或制造缺陷的扰动时，它们会转变为品质因子极高但有限的准连续域束缚态。此类准连续域束缚态超表面可产生强场局域和窄共振，从而应用于激光、[12-14] 传感、[15] 非线性光学、[16] 以及量子光生成。[17] 准连续域束缚态超表面能够以极低的辐射损耗将光聚集到亚波长区域，因此适合与过渡金属硫族化合物单层等原子级薄材料耦合。[18-25]

在增强光–物质相互作用时，一个关键的设计考量是准连续域束缚态超表面是由基底支撑，还是作为自由悬空结构悬置。由基底支撑的结构更易于制造和集成，但存在若干局限：基底与纳米结构之间较低的折射率反差往往会导致辐射泄漏至基底，从而降低可实现的品质因数；此外，基底还可能扰动场分布，降低共振模式与表面束缚发射体之间的重叠程度。[26, 27] 相比之下，悬空膜消除了通向基底的泄漏路径，并能在结构两侧实现对称的光场限制。[18, 28] 这种对称性不仅能使可实现的品质因数达到最大，还能增强近场强度。因此，对于主要通过直接界面相互作用的原子级薄过渡金属硫族化合物，自由悬空平台为增强激子发射提供了独特的有利环境。

以往大多数研究都聚焦于利用基阶（零阶）连续谱束缚态模式。这些基阶模式通常将场集中在光子薄板内部，并已被用于

增强过渡金属硫族化合物中的自发发射、激子–极化激元形成和非线性光学。[18-25]然而，关于高阶连续域束缚态的研究仍然有限。[13, 14] 由于场分布各异，奇数阶连续域束缚态模式在表面区域附近表现出更强的场局域，从而提高了与表面材料的耦合效率。这类表面局域共振在顶表面具有强场增强特性，因此特别适用于过渡金属硫族化合物单层，可在材料所在位置实现高效耦合。尽管前景引人注目，针对高阶连续域束缚态在增强过渡金属硫族化合物发射方面作用的系统研究仍然鲜有报道。

在此，我们通过实验展示，由悬空超表面支持的一阶准连续域束缚态能够显著增强二硫化钨（WS_2）单层的光致发光；该悬空超表面由氮化硅（SiN）薄膜上的聚合物孔阵列薄板构成。通过场增强模拟和光致发光测量，我们确定了一阶模式的场分布，并证实其在增强顶表面处的场方面发挥着决定性作用。我们的结果表明，悬空超表面中的一阶连续域束缚态是一种用于增强二维材料中光–物质相互作用的全新且有力的设计原则。这种方法可提供一个通用平台，用于调控强激子效应、非线性响应和量子光学功能，为混合光子–二维材料系统开辟新的研究方向。

2. 结果与讨论

图1展示了所设计的悬空超表面，它能显著增强顶表面附近的场，从而大幅增强表面过渡金属硫族化合物单层的光致发光。该增强通过利用一阶准连续域束缚态实现。如图1a所示，所提出的器件由悬空超表面构成——一种位于氮化硅

悬空膜上的聚合物孔阵列薄板。这种特定几何结构对于支持所需的一阶准连续域束缚态至关重要。图1b和c所示的所提出悬空超表面的模拟电能量密度E_{den} 分布直观地证实了强场局域。图1b中的一阶准连续域束缚态在超表面顶表面产生强场增强，而单层正位于此处。场与单层中激子富集区域之间的高度重叠，对于实现高效的激子-光子耦合至关重要。相比之下，图1c中的零阶准连续体中的束缚态在顶表面呈现较弱且更为离域的场，导致相互作用效果较差。图1d展示了第一阶准连续域束缚态超表面上WS_2 单层的光致发光光谱（红色曲线），其光致发光增强十分显著——与同一WS_2 单层位于零阶准连续体中的束缚态超表面上（浅红色曲线）或WS_2 单层位于无结构膜上（黄色曲线）时的光致发光相比，强度大幅提升。光致发光的显著增强证实，一阶准连续域束缚态大幅提高了WS_2 单层的辐射效率，这直接归因于强场增强和高效的激子-光子耦合。

图2a展示了所提出的悬空超表面的示意图。该超表面由聚合物光刻胶中制备的三角晶格空气孔阵列构成，晶格周期为$P = 560$ nm，孔径为$D = 280$ nm，厚度为$T = 400$ nm，并置于厚度为50 nm的SiN悬空膜上。该悬空超表面旨在支持导模（GMs）和连续域束缚态，尤其是一阶模式可为与WS_2 单层的光-物质相互作用提供强场增强。图2b展示了该悬空超表面模拟得到的角分辨反射光谱。采用x偏振光沿y方向照射，并使用严格耦合波分析（RCWA）对结构进行表征。入射角θ_y 在0°至2.5°之间变化，以分辨预期出现在

该Γ 点的对称性保护的连续体中的束缚态。正入射时，光谱中连续域束缚态模式的线宽趋于零，因此可与导模清晰区分。在较长波长范围内，可识别出四个零阶模式，包括一个导模（GM_{0th}）和三个连续域束缚态（$BIC_{0th,1}$、$BIC_{0th,3}$、$BIC_{0th,4}$）。在较短波长范围内，可识别出四个一阶模式，包括一个导模（GM_{1st}）和三个连续域束缚态（$BIC_{1st,1}$、$BIC_{1st,3}$、$BIC_{1st,4}$）。此外，在x方向倾斜照明（θ_x）条件下，还可激发$BIC_{0th,2}$和$BIC_{1st,2}$，如图S1所示。实际中，由于制造缺陷、有限尺寸效应和非零入射角不可避免地造成辐射泄漏，理想连续域束缚态会转变为准连续域束缚态。尽管如此，它们仍保持极高的品质因数，从而实现强光场限制。图2c和d分别展示了$\theta_y = 2.5^\circ$ 处零阶和一阶模式的E_{den} 空间分布。上方图显示氮化硅薄膜中间位置的面内（xy平面）场分布，下方图则显示穿过晶胞的面外（yz平面）横截面。xy平面场分布图证实，零阶和一阶模式具有相似的面内对称性，这与其横电特性一致（图S2）。相比之下，yz平面场分布凸显了垂直模式阶数的显著差异：零阶模式在氮化硅薄膜内仅有一个波腹，而一阶模式则有两个波腹——一个位于薄膜内，另一个靠近光刻胶–空气界面。顶表面处的这种强场增强表明，一阶连续域束缚态可为与过渡金属硫族化合物单层耦合提供理想环境，从而实现高效的光致发光增强和激子–光子相互作用。

为凸显悬空结构对于实现具有强表面场限制的一阶模式的重要性，图3对比了衬底支撑超表面与悬空超表面，并进一步比较了零阶和一阶模式的场增强特性。图3a和b展示了模拟得到的反射光谱，二者均在入射

角度为 $\theta_y = 2.5°$ 时，分别针对二氧化硅（SiO_2）衬底上的聚合物孔阵列薄板，以及置于SiN悬空膜上的相同薄板，在不同晶格周期下测得。两种情况下，共振波长均随晶格周期增大而红移，这与有效光程增加相一致。值得注意的是，通过调节晶格周期，可以轻松地将共振波长调谐至可见光范围内的任意位置，从而与过渡金属硫族化合物单层的激子跃迁实现精确的光谱匹配，并通过激子–光子耦合最大化光–物质相互作用。如图3b所示，在悬空超表面中可以清晰观察到零阶和一阶模式。相比之下，在衬底支撑超表面中（图3a），衬底诱导泄漏会强烈抑制一阶导模和准连续域束缚态的形成。此外，大量场泄漏至衬底会导致共振衰减，从而降低反射率对比度。

图3c-e展示了在$\theta_y = 2.5°$时，导模、连续域束缚态$_2$ 和连续域束缚态$_4$ 的E_{den} 空间分布。通过将零阶和一阶模式的晶格周期P分别设为480 nm和560 nm，将这些模式的共振波长调谐至接近WS_2 的激子发射峰波长（~620 nm）。上方图显示顶表面处的面内（xy平面）场分布，下方图则显示穿过晶胞的面外（xz平面）横截面。对于衬底支撑情形（图3c-e左图），尽管场强烈局限于氮化硅薄膜内（连续域束缚态$_{0th,4}$时最高达10^4），顶表面的场增强仍降低了约两个数量级，导致顶表面处的场局域较弱。与悬空超表面（中图和右图）相比，衬底支撑情形下所有模式的场增强都显著较弱，这表明场明显泄漏至衬底中。

相比之下，悬空超表面能够在顶表面附近实现更强的场增强。与衬底支撑超表面相比，零阶模式的表面场更强，而一阶模式的增强效果则更为显著。比较零阶和一阶模式的表面场增强，导模$_{1st}$、连续域束缚态$_{1st,2}$和连续域束缚态$_{1st,4}$的最大E_{den} 分别为82、444和3177，远高于相应的零阶模式：导模$_{0th}$ （11）、连续域束缚态$_{0th,2}$（175）和连续域束缚态$_{0th,4}$（1541）。这种增强源于一阶模式的场波腹与顶表面邻近区域重合（下方图）。此外，与几何模相比，准连续域束缚态始终表现出更强的增强；连续域束缚态$_{1st,4}$的增强超过导模一个数量级（图3c和e右图）。总之，衬底诱导泄漏会抑制一阶模式的形成，而悬空结构则能使其得以保留。由于其场分布特性，一阶模式带来的表面场增强显著强于零阶模式，从而直接有利于与过渡金属硫族化合物单层的光–物质相互作用。

为实验表征其光学性质，制备了所设计的悬空超表面（制备的悬空超表面的光学显微镜（OM）和扫描电子显微镜图像分别如图S3和图S4所示）。由于本研究使用的氮化硅薄膜存在缺陷相关态，在光泵浦下可观察到宽带PL发射（图S5），从而使所研究的几何模和准连续域束缚态能够与该PL带耦合。图4a展示了转移WS_2 单层之前，不同晶格周期P（420–580 nm）的悬空超表面的实验光致发光光谱。光致发光光谱显示出多个对应于光学共振的发射峰。与模拟结果预期一致，共振波长随晶格周期增大而红移，这是由于光程增加所致。对于420 nm的晶格周期，在550 nm波长附近出现一组共振，

对应零阶模式；当晶格周期为580 nm时，该组共振移至700 nm波长处。晶格周期为460 nm和480 nm时，零阶模式出现在620 nm附近，与WS_2的激子发射波长重叠。此外，一阶模式出现在较短波长处（晶格周期为440 nm时为~510 nm）。当晶格周期为560 nm时，这些模式与WS_2的激子发射波长重叠。对于几何模，激子发射波长WS_2附近存在GM_{0th}，其波长为590.2 nm、品质因数为138（晶格周期为460 nm）；还存在GM_{1st}，其波长为582.6 nm、品质因数为55（晶格周期为560 nm）。图4b和图4c展示了突出零阶和一阶准连续域束缚态的窄范围光致发光光谱。对于460 nm的晶格周期（图4b），多峰组可分解为洛伦兹分量，分别对应波长为598.7、601.5和605.4 nm的$BIC_{0th,1}$、$BIC_{0th,2}$和$BIC_{0th,3}$，其品质因数分别为214、143和162。对于560 nm的晶格周期（图4c），一阶峰组可分解为$BIC_{1st,1}$、$BIC_{1st,2}$和$BIC_{1st,3}$，其波长分别为607.7、613.7和616.9 nm，品质因数分别为122、173和251。对应晶格周期的模拟反射光谱如图4d和图4e所示，重现了实验趋势。对于460 nm的晶格周期（图4d），反射峰出现在572.3、576.3和579.4 nm；而对于560 nm的晶格周期（图4e），峰值出现在592.1、598.6和602.2 nm。实验与模拟之间的偏移归因于氮化硅和聚合物光刻胶折射率的偏差。这些结果通过实验表明，通过调节晶格周期，自支撑超表面结构能够在可见光谱范围内同时支持零阶和一阶准连续域束缚态，为增强二维材料（如过渡金属硫族化合物单层）的光–物质相互作用提供了一个多用途平台。

为验证光学模式通过场增强所带来的光致发光增强，我们将 WS_2单层转移到悬空超表面上（光学显微图像见图S3）。图5a和图5b分别展示了支持零阶

和一阶模式的悬空超表面所获得的光致发光光谱。在图5a中，晶格周期为P= 440、460和480 nm的悬空超表面支持零阶模式，其共振与 WS_2激子发射带光谱重叠。图中还以无结构膜上的 WS_2 发射作为参考（为便于观察，对其进行了缩放×10 ）。在这些悬空超表面中，P = 460nm的样品增强最强，因为其准连续域束缚态与 WS_2的本征光致发光发射峰重叠最为接近。当P = 440 nm时，共振发生光谱失谐，因此增强较弱。在P = 480 nm时，尽管导模$_{0th}$ 与 WS_2 光致发光发射峰在光谱上重叠，但其场局域弱于准连续域束缚态，因此与P = 460 nm的情况相比，增强相对有限。图5b展示了晶格周期为P = 540、560和580 nm的超表面，它们支持与 WS_2 发射带光谱重叠的一阶模式。当P = 540 nm时，共振与 WS_2 发射带发生光谱失谐，导致增强较弱。不过，其光致发光强度仍与P = 460 nm悬空超表面相当，后者的发射由零阶模式增强。P = 560 nm时增强最为显著，此时一阶准连续域束缚态与 WS_2 发射峰在光谱上对齐。通过调节晶格周期，使一阶准连续域束缚态与 WS_2 发射带实现精确的光谱重叠；同时，一阶模式独特的场分布使增强场与 WS_2 单层具有很高的空间重叠，从而促进高效的激子–光子耦合，显著增强光致发光峰。在P = 580 nm时，尽管增强主要来自场增强较弱的导模$_{1st}$ 而非准连续域束缚态，增强仍然显著，这凸显了一阶模式相比零阶模式具有更强的表面场限制。值得注意的是，630纳米附近的三个峰对应一阶准连续域束缚态。尽管它们与 WS_2 光致发光强度最大值存在失谐，仍能显著增强发射，进一步

这证明了一阶共振所提供的稳健表面耦合。图 5c 直接比较了具有 P = 460 nm（由零阶模式增强 PL）和 P = 560 nm（由一阶模式增强 PL）的悬空超表面的 PL 增强因子。增强因子定义为超表面与无结构膜之间的 PL 强度比；一阶准连续域束缚态在 P = 560 nm 时，增强因子达到 127。即使较弱的 GM_{1st} 共振在~585 nm 时也能达到 90 的增强因子，远高于零阶模式。相比之下，P = 460 nm（零阶模式）的峰值增强因子仅为 21。这一差异证实，一阶共振在顶表面产生的更强场增强可直接实现 WS_2 单层中更高效的激子–光子耦合。

3. 结论

我们证明了，悬空超表面在可见光谱范围内可支持零阶和一阶准连续域束缚态，从而能够与 WS_2 单层实现高效耦合。零阶连续域束缚态主要将场限制在悬空超表面内部，而一阶连续域束缚态则能在悬空超表面的顶表面产生强场增强，并与 WS_2 单层重叠。因此，一阶共振带来的光致发光增强显著更强，超过零阶共振的六倍。我们的实验和仿真结果表明，悬空超表面中的一阶连续域束缚态是一种强大的设计原理，可增强二维材料（如过渡金属硫族化合物单层）中的光–物质相互作用。除了光致发光增强之外，这种方法还为在二维材料基纳米光子器件中实现强激子–光子耦合、非线性过程和量子光学功能开辟了新途径。

4. 方法

数值模拟

采用严格耦合波分析方法（DiffractMOD，RSoft Design Group，美国）对悬空超表面的远场反射光谱及其共振模式的近场电场分布进行了数值分析。仿真在x和y方向采用周期性边界条件，在z方向采用完全匹配层边界。以沿 z 轴传播的平面波作为入射源。电场**E**按入射场振幅进行归一化。电能量密度计算为$U_E = 1/2\int \mathrm{Re}[\varepsilon(\mathbf{r}')]|\mathbf{E}|^2\, dV$，其中**E**为电场，ε为随空间变化的介电常数，V 为仿真区域的体积。

制备

使用电子束光刻在氮化硅薄膜上的聚合物光刻胶中定义了三角晶格孔阵列图案。氮化硅薄膜由 Ted Pella, Inc. 提供。

WS_2 单层的制备

WS_2 薄膜采用标准化学气相沉积（CVD）法，在单温区卧式石英管式炉（直径 2 英寸）中生长。将三氧化钨（WO_3, Sigma-Aldrich，99.9%，100 mg）作为钨源，与 c 面蓝宝石衬底一同置于中央加热区。中央区加热至 960 °C 并保持 15 min，以实现薄膜生长。使用前预先固化的硫粉（S，Sigma-Aldrich，99.99%，3 g）置于上游的石英舟中，并用外部加热带加热至 145 °C。硫粉加热在中央区达到目标温度前 10 min 开始。生长过程开始前，将石英管抽至本底压力，并通入由 Ar（200 sccm）和 H_3（40 sccm）组成、压力为 20 torr 的载气混合物进行吹扫。生长结束后，保持 Ar/H_3 气流，使炉体自然冷却至室温。

采用聚二甲基硅氧烷（PDMS）辅助湿法刻蚀技术转移 WS_3 薄膜。将自制的 PDMS 印章通过自然黏附贴合到 WS_2 表面。随后，将蓝宝石衬底浸入氢氧化钾溶液中刻蚀去除，使 WS_2 薄膜释放并转移至 PDMS 上。接着，将 PDMS/WS_2 组件对准并与悬空超表面接触，再进行 1 h 真空处理以增强黏附。最后，在 60 °C 下轻微加热 10 min，使 PDMS 脱离，成功将 WS_2薄膜转移至超表面上。

光学表征

使用10× 物镜将激发光聚焦到样品上。采用共聚焦激光显微镜系统（alpha300 R, WITec，德国）测量悬空超表面的光致发光（PL）光谱。波长为488 nm的连续波（CW）激光器作为激发光源。光束通过10× 物镜（NA = 0.25）聚焦到样品上，发射的光致发光信号由同一物镜收集，并使用光谱仪进行分析。

图表。

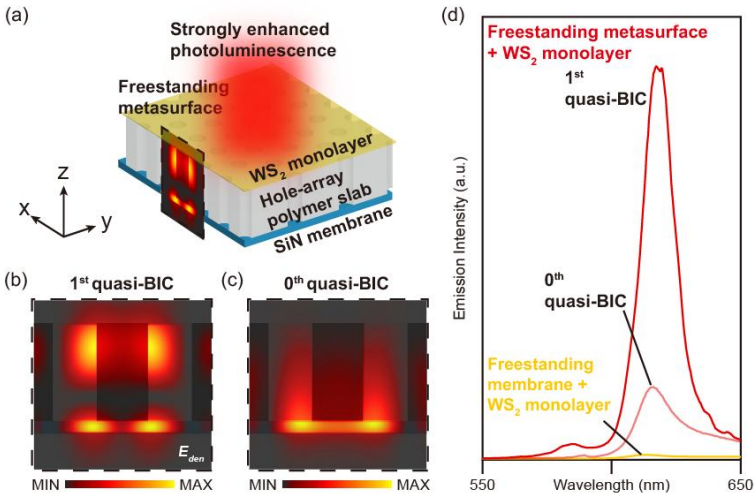

图1。 二硫化钨（WS_2）单层的光致发光（PL）显著增强

由支持一阶准连续域束缚态（准BICs）的悬空超表面实现，该超表面可提供强表面场限制和高效的激子–光子耦合。(a) 概念示意图：WS_2 单层置于悬空超表面上，该超表面由位于氮化硅（SiN）薄膜上的孔阵列聚合物薄板构成。在<sty le id='2'>E_{den} 的一阶准连续域束缚态（b）和零阶准连续体中的束缚态（c）处，模拟的电能量密度分布位于*yz*平面内。(d) 不同条件下WS_2 单层的光致发光光谱：一阶准连续域束缚态（红色曲线）、零阶准连续体中的束缚态（浅红色曲线）以及无结构膜上的光谱（黄色曲线）。

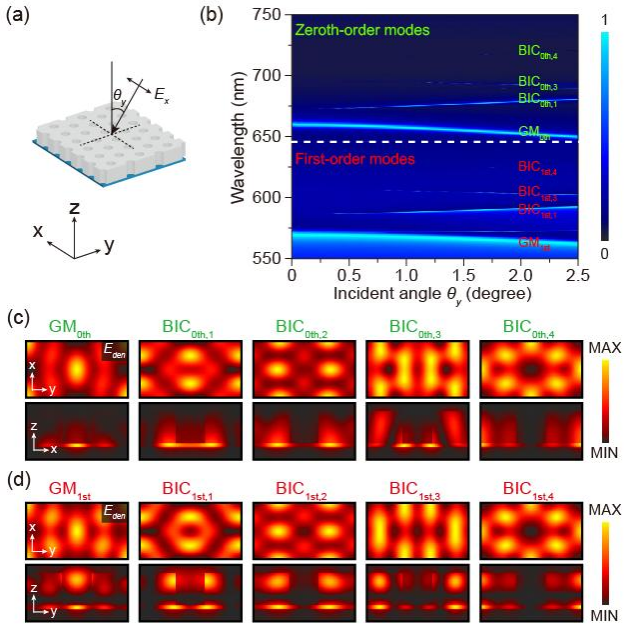

图 2。经设计可支持一阶导模（GMs）和

在顶表面具有强场增强的准连续域束缚态。(a) 膜超表面示意图，由聚合物光刻胶中图案化的三角晶格空气孔阵列构成，晶格周期为 $P = 560$ nm，孔径为 $D = 280$ nm，厚度为 $T = 400$ nm，并置于厚度为 50 nm 的氮化硅薄膜上。(b) 在沿 y 方向的 x 偏振光照射下模拟得到的角分辨反射光谱，显示了导模和准连续域束缚态。 (c) 零阶模式和 (d) 一阶模式的电能量密度 E_{den} 分布，入射角 θ =2.5°。

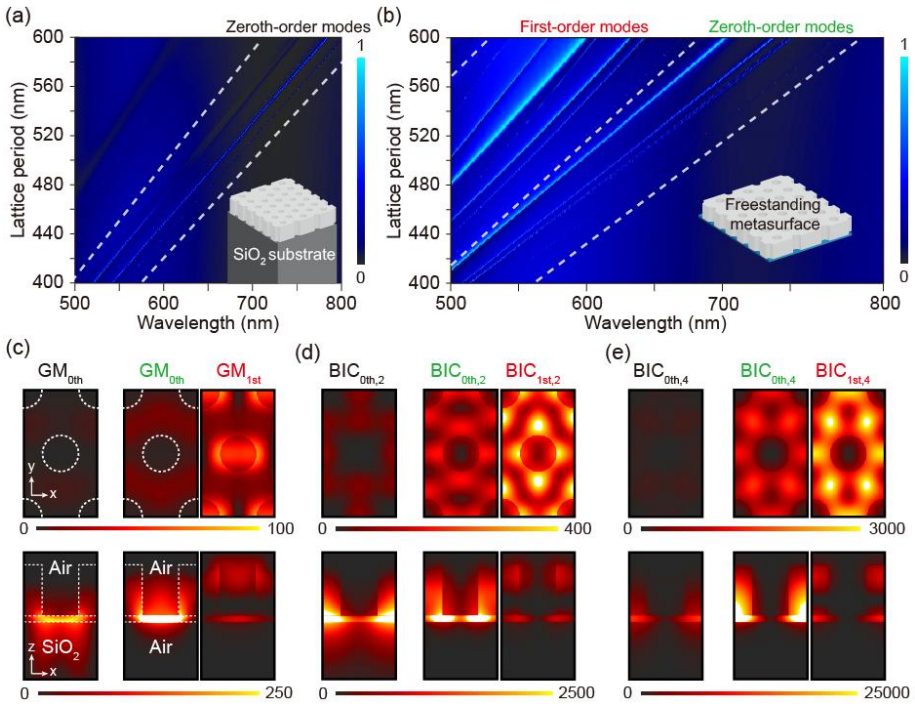

图3。通过一阶模在悬空超表面顶表面实现强场增强——

模拟了（a）基底支撑超表面和（b）悬空超表面的反射光谱随晶格周期的变化。基底支撑超表面和悬空超表面中（c）导模、（d）BIC_2, 和（e）BIC_4 的顶表面*xy*平面及*xz*平面上的电能量密度E_{den} 分布。入射光为*x*偏振，沿*y*方向以2.5°的入射角入射。

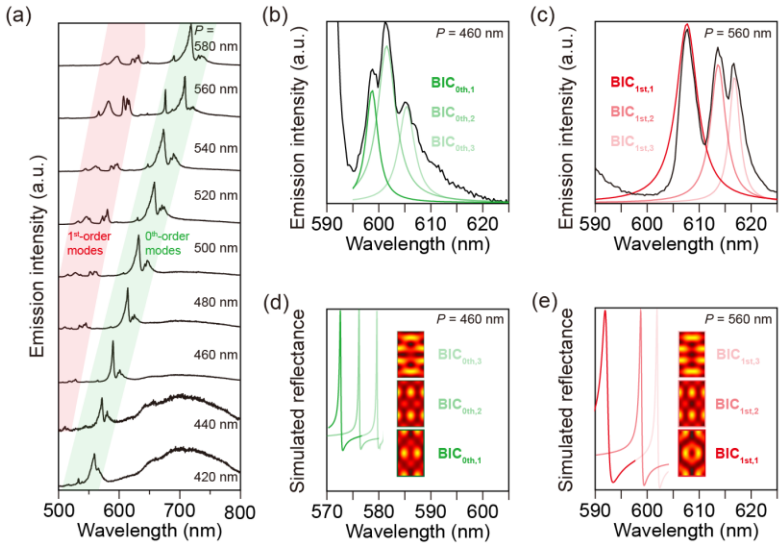

图4。恶魔　　通过自支撑结构展示零阶和一阶 GMs 及准连续域束缚态

超表面。（a）悬空超表面的光致发光光谱随晶格周期的变化。（b、c）分别突出显示对应于零阶（P = 460 nm）和一阶（P = 560 nm）准连续域束缚态的光谱区域的光致发光光谱。（d、c）分别为具有P = 460 nm和P = 560 nm的悬空超表面的模拟反射光谱。插图显示准连续域束缚态的E_{den}分布。

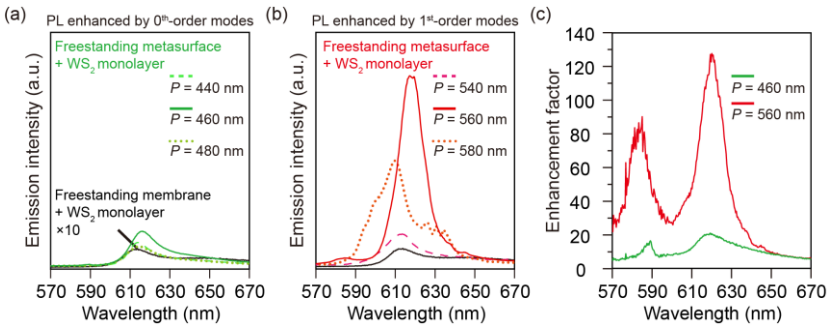

图 5。 通过几何模和准连续域束缚态增强 WS_2 单层的 PL 发射

悬空超表面。（a、b）分别为位于支持零阶模式和一阶模式的悬空超表面上的WS_2 单层的光致发光光谱，其晶格周期分别为440、460和480 nm（零阶模式）以及540、560和580 nm（一阶模式）。作为参考，还显示了无结构悬空膜上WS_2 的光致发光光谱。零阶模式和一阶模式均与WS_2 激子发射耦合。（c）增强因子定义为悬空超表面上的WS_2 单层与无结构膜上WS_2 单层之间的光致发光强度比；图中给出了晶格周期为460和560 nm的悬空超表面的增强因子。

作者信息

通讯作者

*电子邮箱：Ya-Lun Ho，HO.Ya-Lun@nims.go.jp

作者贡献

本稿由所有作者共同撰写。所有作者均已批准稿件的最终版本。

资金来源

JSPS KAKENHI 资助编号 JP23K26155、JP25KF0083，日本文部科学省（MEXT）日本先进材料与纳米技术研究基础设施（ARIM）（提案编号 25NM5090）

致谢

本研究得到 JSPS KAKENHI 资助，项目编号为 JP23K26155、JP25KF0083。本研究的部分工作得到日本文部科学省（MEXT）日本先进材料与纳米技术研究基础设施（ARIM）的支持（提案编号 JPMXP1225NM5090）。

参考文献

(1) Xia, F.; Wang, H.; Xiao, D.; Dubey, M.; Ramasubramaniam, A, 《二维材料纳米光子学》。*Nat. Photonics* **2014年,** *8* (12), 899-907. (2) Turunen, M.; Brotons-Gisbert, M.; Dai, Y.; Wang, Y.; Scerri, E.; Bonato, C.; Jöns, K. D.; Sun, Z.; Gerardot, B. D, 《层状二维材料量子光子学》。《自然综述：物理学》( ), - . **2022年,** *4* 4 219236 D材料。(3) Mueller, T.; Malic, E, 《二维过渡金属二硫属化物半导体的激子物理学与器件应用》。*npj*《二维材料与应用》**2018年,** *2* (1), 29。

(4) Wu, S.; Buckley, S.; Schaibley, J. R.; Feng, L.; Yan, J.; Mandrus, D. G.; Hatami, F.; Yao, W.; Vuckovic, J.; Majumdar, A.; Xu, X，具有超低阈值的单层半导体纳米腔激光器。《自然》2015年, 520 (7545), 69-72. (5) Velusamy, D. B.; Kim, R. H.; Cha, S.; Huh, J.; Khazaeinezhad, R.; Kassani, S. H.; Song, G.; Cho, S. M.; Cho, S. H.; Hwang, I.; Lee, J.; Oh, K.; Choi, H.; Park, C，用于带选择性光探测的柔性过渡金属二硫族化物纳米片。Nat. Commun. 2015年, 6 (1), 8063. (6) Butun, S.; Tongay, S.; Aydin, K，利用等离激元纳米盘阵列增强大面积单层 MoS(2) 的光发射。Nano Lett 2015年, 15 (4), 2700-2704. (7) Koperski, M.; Nogajewski, K.; Arora, A.; Cherkez, V.; Mallet, P.; Veuillen, J. Y.; Marcus, J.; Kossacki, P.; Potemski, M，剥离二硒化钨结构中的单光子发射体。Nat Nanotechnol 2015年, 10 (6), 503-506. (8) Chen, J. H.; Xiong, Y. F.; Xu, F.; Lu, Y. Q，集成二维材料的石英光纤：迈向光电机电技术。Light Sci Appl 2021年, 10 (1), 78. (9) Bucher, T.; Vaskin, A.; Mupparapu, R.; Löchner, F. J. F.; George, A.; Chong, K. E.; Fasold, S.; Neumann, C.; Choi, D.-Y.; Eilenberger, F.; Setzpfandt, F.; Kivshar, Y. S.; Pertsch, T.; Turchanin, A.; Staude, I，利用米氏共振超表面调控 MoS_2单层的光致发光。ACS Photonics 2019年, 6 (4), 1002-1009. (10) Hsu, C. W.; Zhen, B.; Stone, A. D.; Joannopoulos, J. D.; Soljačić, M，连续域束缚态。Nat. Rev. Mater. 2016年, 1 (9), 1-13. (11) Azzam, S. I.; Kildishev, A. V，光子连续域束缚态：从基础到应用。《先进光学材料》2020年, 9 (1), 2001469. (12) Kodigala, A.; Lepetit, T.; Gu, Q.; Bahari, B.; Fainman, Y.; Kante, B，光子连续域束缚态产生的激光作用。《自然》2017年, 541 (7636), 196-199. (13) Xing, D.; Chen, M. H.; Wang, Z.; Deng, C. Z.; Ho, Y. L.; Lin, B. W.; Lin, C. C.; Chen, C. W.; Delaunay, J. J，溶液加工的钙钛矿量子点准连续域束缚态激光器：微型化低横向损耗腔。《先进功能材料》2024年, 34 (26), 2314953. (14) Wu, M.; Ding, L.; Sabatini, R. P.; Sagar, L. K.; Bappi, G.; Paniagua-Dominguez, R.; Sargent, E. H.; Kuznetsov, A. I，纳米天线耦合平板波导中的连续域束缚态实现低阈值量子点激光。Nano Lett 2021年, 21 (22), 9754-9760. (15) Romano, S.; Mangini, M.; Penzo, E.; Cabrini, S.; De Luca, A. C.; Rendina, I.; Mocella, V.; Zito, G，基于准连续域束缚态的超灵敏表面折射率成像。ACS Nano 2020年, 14 (11), 15417-15427. (16) Anthur, A. P.; Zhang, H.; Paniagua-Dominguez, R.; Kalashnikov, D. A.; Ha, S. T.; Mass, T. W. W.; Kuznetsov, A. I.; Krivitsky, L，利用磷化镓超表面中的准连续域束缚态实现连续波二次谐波产生。Nano Lett 2020年, 20 12 8745 8751 ( ), - . (17) Santiago-Cruz, T.; Gennaro, S. D.; Mitrofanov, O.; Addamane, S.; Reno, J.; Brener, I.; Chekhova, M. V，用于产生复杂量子态的共振超表面。《科学》2022年, 377, 991. (18) Ho, Y. L.; Fong, C. F.; Wu, Y. J.; Konishi, K.; Deng, C. Z.; Fu, J. H.; Kato, Y. K.; Tsukagoshi, K.; Tung, V.; Chen, C. W，用于增强单层过渡金属二硫族化物中光物质耦合的有限面积膜超表面。ACS Nano 2024年, 18 (35), 24173-24181. (19) Bernhardt, N.; Koshelev, K.; White, S. J. U.; Meng, K. W. C.; Froch, J. E.; Kim, S.; Tran, T. T.; Choi, D. Y.; Kivshar, Y.; Solntsev, A. S，准连续域束缚态共振增强 WS_2单层中的二次谐波产生。Nano Lett 2020年, 20 (7), 5309-5314。

(20) Lee, J.; Jeong, M.; Jang, J.; Kim, J.; Mun, J.; Gong, X.; Fang, R.; Yang, Y.; Chae, S. H.; Kim, S.; Rho, J., 连续域束缚态诱导的定向光致发光：WS_2单层中的偏振奇点。*Nano Lett* **2025年,** *25* (2), 861-867. (21) Barth, I.; Deckart, M.; Conteduca, D.; Arruda, G. S.; Hayran, Z.; Pasko, S.; Krotkus, S.; Heuken, M.; Monticone, F.; Krauss, T. F.; Martins, E. R.; Wang, Y., 双共振超表面实现大面积二维材料激光。*ACS Nano* **2024年,** *18* (20), 12897-12904. (22) Löchner, F. J. F.; George, A.; Koshelev, K.; Bucher, T.; Najafidehaghani, E.; Fedotova, A.; Choi, D.-Y.; Pertsch, T.; Staude, I.; Kivshar, Y.; Turchanin, A.; Setzpfandt, F., 用于增强化学气相沉积生长 MoS2 单层二次谐波产生的混合介质超表面。*ACS Photonics* **2020年,** *8* (1), 218-227. (23) Maggiolini, E.; Polimeno, L.; Todisco, F.; Di Renzo, A.; Han, B.; De Giorgi, M.; Ardizzone, V.; Schneider, C.; Mastria, R.; Cannavale, A.; Pugliese, M.; De Marco, L.; Rizzo, A.; Maiorano, V.; Gigli, G.; Gerace, D.; Sanvitto, D.; Ballarini, D., 连续域束缚态使单层 WS(2) 的光物质耦合显著增强。*Nat Mater* **2023年,** *22* (8), 964-969. (24) Kravtsov, V.; Khestanova, E.; Benimetskiy, F. A.; Ivanova, T.; Samusev, A. K.; Sinev, I. S.; Pidgayko, D.; Mozharov, A. M.; Mukhin, I. S.; Lozhkin, M. S.; Kapitonov, Y. V.; Brichkin, A. S.; Kulakovskii, V. D.; Shelykh, I. A.; Tartakovskii, A. I.; Walker, P. M.; Skolnick, M. S.; Krizhanovskii, D. N.; Iorsh, I. V., 与光学连续域束缚态耦合的单层半导体中的非线性极化激元。*Light Sci Appl* **2020年,** *9*, 56. (25) Weber, T.; Kuhner, L.; Sortino, L.; Ben Mhenni, A.; Wilson, N. P.; Kuhne, J.; Finley, J. J.; Maier, S. A.; Tittl, A., 范德华超表面中自混合连续域束缚态实现的本征强光-物质耦合。*Nat Mater* **2023年,** *22* (8), 970-976. (26) Xu, L.; Zangeneh Kamali, K.; Huang, L.; Rahmani, M.; Smirnov, A.; Camacho-Morales, R.; Ma, Y.; Zhang, G.; Woolley, M.; Neshev, D.; Miroshnichenko, A. E., 通过磁偶极子准连续域束缚态超薄谐振器实现动态非线性图像调谐。*Adv. Sci.* **2019年,** *6* (15), 1802119. (27) Sadrieva, Z. F.; Sinev, I. S.; Koshelev, K. L.; Samusev, A.; Iorsh, I. V.; Takayama, O.; Malureanu, R.; Bogdanov, A. A.; Lavrinenko, A. V., 从光学连续域束缚态到泄漏共振的转变：基底与粗糙度的作用。*ACS Photonics* **2017年,** *4* (4), 723-727. (28) Adi, W.; Rosas, S.; Beisenova, A.; Biswas, S. K.; Mei, H.; Czaplewski, D. A.; Yesilkoy, F., 利用膜超表面在空气中俘获光，实现振动态强耦合。*Nat. Commun.* **2024年,** *15* (1), 10049.