



## 铅卤钙钛矿法布里-珀罗谐振腔激光器

赵辛未 吕俊鹏 倪振华

### Lead halide perovskites Fabry-Pérot resonant cavity laser

Zhao Xin-Wei Lü Jun-Peng Ni Zhen-Hua

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 70, 054205 (2021) DOI: 10.7498/aps.70.20201302

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.70.20201302>

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

发光铅卤钙钛矿纳米晶稳定性的研究进展

Research progress of stability of luminous lead halide perovskite nanocrystals

物理学报. 2020, 69(11): 118501 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20191767>

铅基钙钛矿铁电晶体高临界转变温度的机器学习研究

High critical transition temperature of lead-based perovskite ferroelectric crystals: A machine learning study

物理学报. 2019, 68(21): 210502 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190942>

钙钛矿的Rashba效应及其对载流子复合的影响

Rashba effect in perovskites and its influences on carrier recombination

物理学报. 2019, 68(15): 158506 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190675>

异质结构在光伏型卤化物钙钛矿光电转换器件中的应用

Application of heterostructures in halide perovskite photovoltaic devices

物理学报. 2020, 69(16): 167804 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200591>

高效绿光钙钛矿发光二极管研究进展

Research progress of efficient green perovskite light emitting diodes

物理学报. 2019, 68(15): 158504 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190647>

有机金属卤化物钙钛矿中的离子迁移现象及其研究进展

Recent progress of ion migration in organometal halide perovskite

物理学报. 2019, 68(15): 158801 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190853>

综述

## 铅卤钙钛矿法布里-帕罗谐振腔激光器

赵辛未 吕俊鹏<sup>†</sup> 倪振华<sup>‡</sup>

(东南大学物理学院, 南京 211189)

(2020年8月10日收到; 2020年9月10日收到修改稿)

随着后摩尔时代的到来, 对大容量、高速度信息处理的需求使得半导体器件应用由电子集成转向光子集成, 高性能微纳激光器是实现光子集成的重要环节. 种类丰富的半导体材料促进了半导体微纳激光器的快速发展, 近年来, 随着大量新型半导体材料(如二维半导体、铅卤钙钛矿等)的涌现, 有望实现半导体微纳激光器性能的进一步提升. 由于钙钛矿材料具有高光吸收、缺陷高容忍、激子结合能大等优异光学性质, 使其成为高增益、低阈值半导体微纳激光器的优秀候选材料. 法布里-珀罗(F-P)谐振腔激光器是钙钛矿激光器中研究广泛、结构简单、应用价值较高的一类激光器. 本文以铅卤钙钛矿F-P谐振腔激光器为例, 对其工作机理以及近年来的研究成果进行综述, 从激子与光子弱耦合的光子激光和强耦合的极化子激光两个方面出发, 详细介绍了钙钛矿材料既作为增益介质又作为谐振腔的F-P结构激光器以及仅作为增益介质的F-P腔激光器的激光的产生原理和影响因素, 最后总结了钙钛矿F-P谐振腔激光器当前面临的挑战, 展望了其进一步发展可能具备的前景.

**关键词:** 钙钛矿, 法布里-珀罗腔, 激光, 极化子**PACS:** 42.55.-f, 42.60.-v, 42.70.-a, 71.36.+c**DOI:** 10.7498/aps.70.20201302

## 1 引言

1960年世界上第一台红宝石激光器的出现使得人类社会迈入激光时代, 极大推动了生物医疗技术、特种材料分析技术、电子通信技术等的. 如今, 半导体激光器成为应用最为广泛的激光器, 其能量转换效率高、体积小等优势使得其成为高分辨显示、光纤通信、光存储等应用的最佳选择, 但是传统半导体激光器所用的GaAs, ZnO, GaN等发光材料的激子结合能小、制备技术复杂、载流子传输性能较差、发光可调范围较窄<sup>[1]</sup>, 不利于激光技术的进一步发展. 而钙钛矿材料由于出色的光吸收和极高的发光量子产率, 近年来在太阳能电池、LED等领域迅猛发展<sup>[2,3]</sup>, 并且在激光应用方面展现出巨大潜力<sup>[4]</sup>. 2014年邢贵川教授等<sup>[5]</sup>首次发

现钙钛矿材料的放大自发辐射(ASE), 展现了钙钛矿材料的高增益行为, 使得钙钛矿的激光应用成为可能. 目前已在多种钙钛矿材料及微腔结构实现激光输出<sup>[6]</sup>, 其展现出制备方法简单、高吸收系数、发光简易可调、双极性载流子传输、低陷阱密度、自组装的量子阱结构<sup>[7,8]</sup>等优异性质. 这些优异性质带来了传统发光材料所不具备的多种多样的激光行为: 通过卤族元素成分的变化可实现钙钛矿材料的带隙控制, 轻松实现覆盖整个可见区域的激光输出<sup>[9,10]</sup>; 钙钛矿材料组分、形貌调节方法简单, 可通过形貌与组分变化实现激光的阈值与模式变化; 钙钛矿材料存在多种相, 并会受到温度、压力、掺杂等的影响, 通过多相之间或量子阱之间的能量传输促进粒子数反转积累, 实现低阈值激光<sup>[11]</sup>; 而且钙钛矿材料晶格容忍度高, 基于钙钛矿的异质结界面缺陷较少<sup>[12]</sup>, 同时又由于其双极性电荷传输特性

<sup>†</sup> 通信作者. E-mail: [phyljp@seu.edu.cn](mailto:phyljp@seu.edu.cn)<sup>‡</sup> 通信作者. E-mail: [zhni@seu.edu.cn](mailto:zhni@seu.edu.cn)

和高发光效率,使得钙钛矿材料具有实现低阈值电泵浦激光的潜力<sup>[13]</sup>.

近年来,小尺寸钙钛矿激光器的研究不断增加,各种形貌的钙钛矿微纳材料以及微腔结构被应用于钙钛矿激光<sup>[14]</sup>.法布里-珀罗(F-P)腔作为一种最为简单和输出方向性高的谐振腔广泛应用于激光器开发,其可以以简单的反馈振荡模式使钙钛矿的高增益行为转变为激光输出<sup>[15]</sup>.在F-P腔钙钛矿激光器中,钙钛矿材料的作用通常分为两种情况:1)同时作为增益介质和谐振腔(被称为F-P结构钙钛矿激光);2)仅作为增益介质,置于其他形式的F-P谐振腔中(被称为F-P微腔钙钛矿激光).对于钙钛矿激光器件,阈值是衡量器件优劣的重要条件,而低阈值来源于钙钛矿材料的高光学增益与低光学损耗,高光学增益主要依赖其特殊能带结构带来的高吸收率<sup>[16]</sup>,以及特殊多量子阱结构(Ruddlesden-Popper钙钛矿)促进的粒子数反转积累<sup>[17]</sup>.而低光学损耗来源于材料的低缺陷密度、高容忍度<sup>[18]</sup>、以及谐振腔的较高品质因子<sup>[19]</sup>.与其他微腔结构相比,F-P腔光输出方向性高,有利于集成应用.同时结构简单,有利于激光机理和发光动力学过程的研究,推动实现电泵浦钙钛矿激光.此外,在钙钛矿F-P腔激光中,F-P腔光子与材料激子存在强耦合现象<sup>[20]</sup>,可形成具有玻色特性的极化子(准粒子),并基于此实现了无需粒子数反转的低阈值极化子激光,因此F-P腔钙钛矿激光可分为弱耦合与强耦合两大类,弱耦合激光来源于钙钛矿材料激子或载流子的自发辐射或受激辐射,称为光子激光<sup>[21]</sup>.强耦合来源于钙钛矿激子与F-P腔光子耦合态的受激散射,称为极化子激光<sup>[22]</sup>.光子激光与极化子激光的研究不断推动钙钛矿F-P腔激光器性能的提高和集成化应用,为新一代微纳激光器的发展提供机遇.因此本文对钙钛矿F-P弱耦合激光和强耦合激光作以综述,介绍F-P腔激光的原理和强耦合产生的原因和条件,从弱耦合和强耦合两个方面介绍钙钛矿F-P腔激光的发展现状,同时从影响激光的诸多因素出发介绍激光产生的动力学过程,归纳目前遇到的问题及解决方案,最后展望未来发展的挑战和前景.

## 2 F-P 谐振腔

F-P谐振腔是结构最为简单的谐振腔,由两面平面镜构成,如图1(a)所示.光波在平面镜反射,

入射光波与反射光波发生干涉,多次往复反射形成多光束干涉,产生驻波.描述光学谐振腔最重要的两个参数为振荡模式与品质因子.同时光泵浦激光过程中,腔光子会与钙钛矿激子产生耦合作用,产生半物质、半光的极化子(准粒子),由于F-P腔光子能量分布形式简单,对于F-P腔极化子产生的研究较为广泛.因此本部分将围绕F-P腔的振荡模式、品质因子、光束约束因子和光子激子耦合作用四个方面进行讨论.

首先考虑光腔的振荡模式,振荡模式用来描述腔内受约束的电磁场本征态的振荡频率和空间分布.振荡模式分为横模和纵模,表示电磁场在纵向与横向的分布(F-P腔的Z方向与XY平面).通常情况下,以 $R_1, R_2$ 表示两面镜子的反射率,以 $L$ 表示谐振腔长度, $\lambda$ 表示光在真空中波长, $n$ 表示材料折射率, $E_0$ 表示腔内电场强度,按照振荡条件<sup>[23,24]</sup>

$$e^{-2inLk} \sqrt{R_1 R_2} e^{2L(g-\alpha)} E_0 = E_0, \quad (1)$$

其中 $k$ 为电场波矢, $g$ 为增益系数, $\alpha$ 为吸收系数.求解方程,材料中的波矢可表示为实部与虚部的和,实部解为 $\text{Re}(k) = q \frac{\pi}{nL}$ ,即 $L = q \frac{\lambda}{2n}$ ( $q$ 为任意正整数),可以得出腔长 $L$ 为半波长的整数倍,因此在F-P腔设计过程中,腔长最小不能小于半波长,即衍射极限.以频率代替波矢得到分离的频率取值,即纵模频率 $\nu_q = q \frac{c}{2nL}$ , $q$ 表示纵模阶数,低阶与高阶纵模振荡如图1(a).相邻纵模的间隔 $\Delta\nu_q = \frac{c}{2nL}$ ,如图1(b),因此纵模间隔也与F-P腔的长度相关.进一步考虑F-P腔驻波的色散,纵模间隔可表示为 $\Delta\lambda_q = \frac{1}{L} \left[ \frac{\lambda^2}{2} \left( n - n \frac{dn}{d\lambda} \right)^{-1} \right]$ .同时波矢虚部解为 $\text{Im}(k) = \frac{\ln \sqrt{R_1 R_2} e^{2L(g-\alpha)}}{-2L}$ ,等式右边为实数,即满足 $g \geq \alpha - \frac{\ln(R_1 R_2)}{2L}$ ,因此F-P腔的长度应满足增益高于反射率消耗.综上,F-P腔的长度设计不易过短.

其次考虑光腔的品质因数,品质因数是描述谐振腔损耗的重要参数.从概念出发,品质因数等于光腔模式的辐射能量与模式损耗能量的比值.从理论上,F-P谐振腔的品质因子 $Q$ 可表示为<sup>[25]</sup>

$$Q = \frac{E_c}{\gamma_c} = \frac{2\pi nL}{\lambda(1-R)} = \omega\tau, \quad (2)$$

其中 $\omega$ 表示光场角频率, $E_c$ 为腔模式能量, $\gamma_c$ 为模

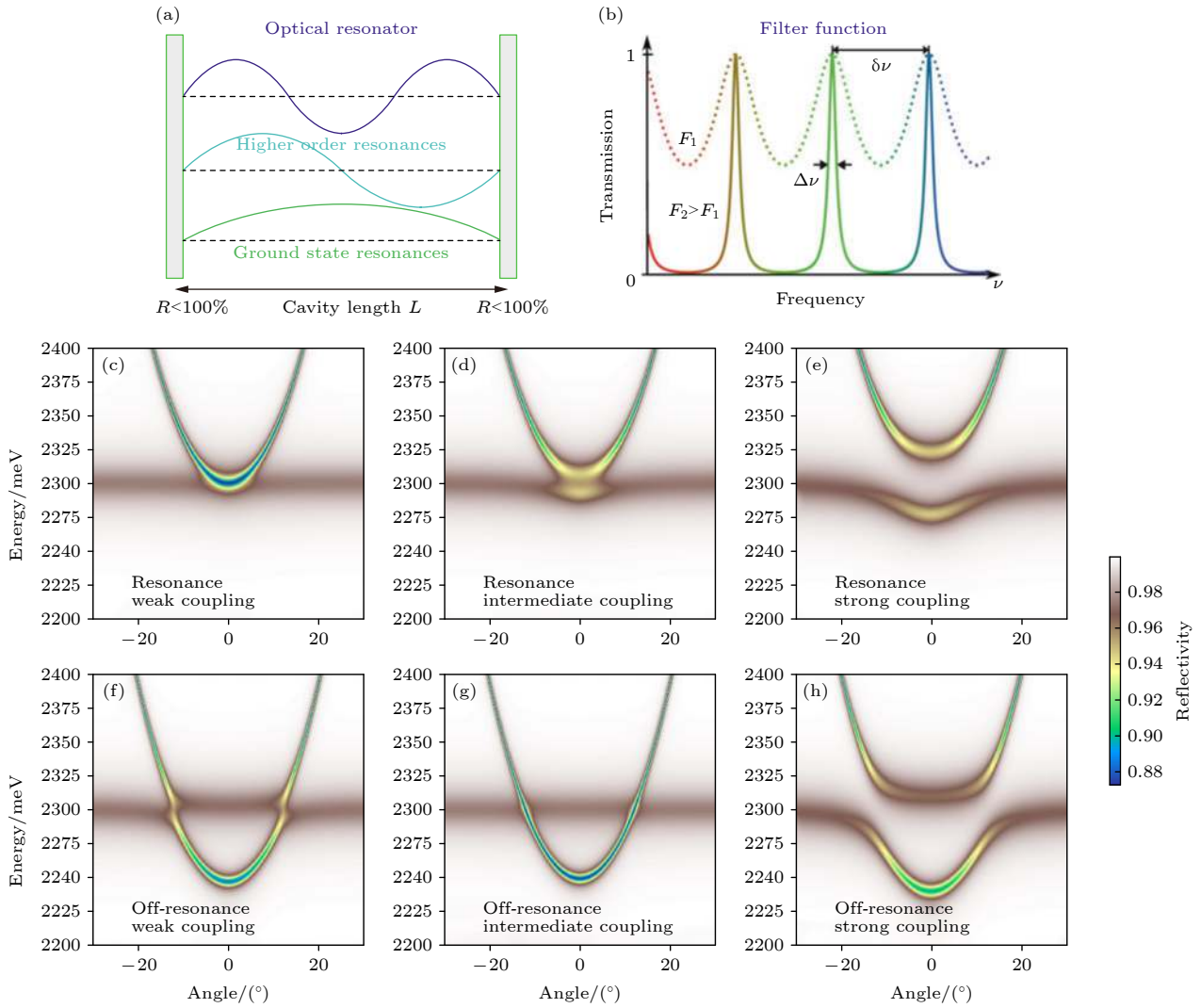


图 1 (a) F-P 腔结构与共振波形; (b) F-P 腔振荡频谱; (c)–(h) 激子与 F-P 腔光子共振和非共振下弱耦合、临界与强耦合的角分辨光致发光谱<sup>[22,23]</sup>

Fig. 1. (a) F-P cavity structure and resonant waveform; (b) frequency spectrum of F-P resonant cavity; (c)–(h) angle-resolved photoluminescence spectra of exciton and F-P cavity photon in resonant/off-resonant weak coupling, intermediate coupling and strong coupling<sup>[22,23]</sup>.

式线宽, 即模式的损耗能量,  $\tau$  为光子寿命. 可以看出光腔品质因子与光子寿命和谐振腔长度成正比. 而在实验过程中, 光学损耗主要来源于材料的吸收损耗和光腔模式的辐射损耗. 为方便起见, 依照定义将能量之比转化为波长之比,  $Q = \lambda/\Delta\lambda$ ,  $\lambda$  为 F-P 腔模式的激光峰中心波长,  $\Delta\lambda$  为激光峰半高宽<sup>[26]</sup>. 所以激光发射峰越窄, 腔的品质因子越高, 单色性越好, 模式能量损耗越小.

除了振荡模式与品质因子外, 对于半导体激光器, 由于 F-P 腔的波导式结构, 总会有部分能量扩展至增益区域以外, 因此以光束约束因子  $\Gamma$  来描述光腔对光子的约束作用. 光束约束因子的定义为增益区域内某一模式的光能量与该模总光能量之比,

而激光的产生来源于腔体材料的自发辐射模式在增益区域内受到增益而产生的激射, 因此  $\Gamma$  也被称为自发辐射耦合系数, 表示模式与材料增益的耦合程度. 由激光原理可知, 阈值增益  $g_{th} = n\omega/(cQ\Gamma)$ , 因此  $Q$  值越大,  $\Gamma$  值越大, 激光阈值越低.

最后讨论 F-P 结构光腔中的耦合现象. 根据量子力学定义, 以  $E_c$  表示光子能量 ( $E_c = \hbar\omega$ ),  $E_x$  表示激子能量 ( $E_x = E_g - E_{bind} + E_k$ ,  $E_g$  为材料带隙,  $E_{bind}$  为激子结合能,  $E_k$  为激子动能),  $\Psi(\mathbf{r})$  表示叠加态函数, 叠加态体系的薛定谔方程矩阵形式为<sup>[27]</sup>

$$H\Psi(\mathbf{r}) = \begin{pmatrix} E_c & \hbar\Omega \\ \hbar\Omega & E_x \end{pmatrix} \begin{pmatrix} C \\ X \end{pmatrix} = E\Psi(\mathbf{r}). \quad (3)$$

解得本征值  $E_{UP,LP} = \frac{1}{2} \left[ E_c + E_x \pm \sqrt{(2\hbar\Omega)^2 + \Delta^2} \right]$ , 其中  $\Delta = \sqrt{E_c - E_x}$  为耦合前激子与光子的失谐能, 光在 F-P 腔形成驻波, 可以看出光子曲线与激子曲线耦合形成两个新状态, 上极化子支 (UPB) 与下极化子支 (LPB),  $(E_{UPB} - E_{LPB})_{\Delta=0} = 2\hbar\Omega = E_{Rabi}$  为拉比劈裂能, 表征体系耦合的强弱. 不同  $\Delta$  值会导致不同的极化子模式, 图 1(e) 和图 1(h) 描绘了共振 ( $\Delta = 0$ ) 与失谐 ( $\Delta > 0$ ) 下的极化子能量分布.

对于 F-P 腔,  $\hbar\Omega \propto \sqrt{\frac{f}{m_e n_{eff}^2 L_{eff}}}$ ,  $f$  为振荡强度,  $m_e$  为电子有效质量,  $n_{eff}$  与  $L_{eff}$  表示有效折射率与有效长度, 因此高振荡强度以及有效长度减小将有助于耦合强度提高, 形成强耦合区域 (SRG). 若进一步考虑激子与光子线宽, 则

$$E_{UP,LP} = \frac{1}{2} \left[ E_c + E_x + i(\gamma_c + \gamma_x) \pm \sqrt{(2\hbar\Omega)^2 + [\Delta + i(\gamma_c - \gamma_x)]^2} \right], \quad (4)$$

其中  $\gamma_c$  与  $\gamma_x$  表示耦合前光子与激子的线宽, 与二者的寿命直接相关, 寿命  $\tau \equiv \delta t \geq \hbar/\gamma$  ( $\gamma = \hbar\Delta\vartheta$ ) (海森伯不确定关系). 从 (4) 式可以看出要形成 SRG 与能级劈裂, 即根号下取实数, 需要满足  $\hbar\Omega > |(\gamma_c - \gamma_x)/2|$ , 即  $\hbar\Omega \gg \gamma_c \gg \gamma_x$ , 因此 SRG 的出现需要耦合强度远大于激子与光子线宽, 即能量在耦合二者间的传递时间远小于二者的寿命, 否则将会形成弱耦合. 图 1(c)—图 1(e) 和图 1(f)—图 1(h) 表示了激子与光子在共振 ( $\Delta = 0$ ) 与失谐 ( $\Delta > 0$ ) 条件下弱耦合到强耦合的能量分布变化. 弱耦合下, F-P 腔输出光子激光, 来源于粒子数反转的激子或载流子的受激辐射. 强耦合下, F-P 腔输出极化子激光, 由于极化子粒子的玻色特性, 无需粒子数反转, 在受激散射的玻色-爱因斯坦凝聚 (BEC) 过程中产生激光, 相较光子激光, 阈值更低. 但强耦合受诸多因素影响, 激子与光子弱耦合状态更为普遍, 因此光子激光更易产生. 下文将钙钛矿 F-P 腔激光研究进展分为弱耦合与强耦合两个部分进行讨论.

### 3 弱耦合钙钛矿 F-P 腔激光

如前所述, 弱耦合钙钛矿 F-P 腔激光为光子激光, 该类型激光的产生经历了自发辐射 (SE) 到

放大自发辐射 (ASE) 再到受激辐射 (STE) 的过程. 在钙钛矿材料中, SE 到 ASE 的转变来源于在泵浦作用下的粒子数反转对材料所产生的 SE 信号的放大作用. 当泵浦作用进一步增大时, STE 超过 SE 成为主要过程, 在粒子数反转的放大作用下产生激光, 激光峰强度极高, 峰宽在 1 nm 以下. 因此从光谱上可以看到发光峰由宽和弱的 SE 峰向极窄极强的激光峰的突变. 目前基于钙钛矿的 F-P 腔结构存在多种形式, 如本身具有 F-P 结构的钙钛矿材料纳米线、立方体、纳米片、四面体以及以钙钛矿为增益介质的微腔型布拉格反射镜 (DBR) 结构、光栅结构等. 本部分将围绕入射光、光学增益、温度、腔尺寸等对激光的影响, 讨论弱耦合下的各种 F-P 腔钙钛矿激光器.

#### 3.1 F-P 结构钙钛矿激光

F-P 结构钙钛矿激光利用钙钛矿材料自身形貌结构形成 F-P 腔, 如纳米线的两个端面、微米片的上下面以及立方体的相对的两面等. F-P 结构钙钛矿激光器的尺寸较小, 通常在微米尺度, 有利于进一步的集成应用. 同时该类型激光对环境因素的影响敏感, 有利于钙钛矿激光机理的研究和钙钛矿激光可控性的发展. 下面从影响 F-P 结构激光行为的因素出发展开讨论. 如前文 F-P 腔原理所述, 腔内纵模间隔与腔长相关, 实验中常通过激光模式间距与 F-P 腔长度倒数的线性关系证明 F-P 腔振荡的存在 [28], 同时也可以通过腔长设计实现单纵模激光. 东南大学徐春祥教授课题组 [29] 研究了纵模数量与  $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbBr}_3$  微米片宽度的关系, 验证了模式数量与模式线宽随微米片宽度的线性变化 (图 2(a) 和图 2(b)), 并在宽度较窄的微米线中实现了单模激光输出. Liu 等 [30] 通过尺寸控制, 验证了腔长对光学增益的影响, 并在亚波长尺度的  $\text{CsPbBr}_3$  钙钛矿纳米立方体中实现了单纵模输出. 但 F-P 腔尺度过小会引起衍射效应而影响激光的产生, 该效应对纳米线激光器的影响尤为突出, 因为纳米线激光器是依靠波导发射来改善腔体中的光反馈而工作的. 因此若纳米线直径较小将无法实现波导而无法激射 [19]. 为实现亚波长尺寸以及降低激光阈值, 研究人员利用金属基底实现等离子体激光器. 入射光子与表面等离子体 (SP) 耦合, 形成表面等离激元 (SPP), 耦合后的 SPP 频率低于 SP 振荡频率, 并随波矢增大趋于 SP 频率. 因此,

SPP 的波长小于自由空间光子, 使得激光器可具有亚波长尺寸, 但场增强带来的局域热效应严重影响了激光输出<sup>[31]</sup>.

钙钛矿材料的发光性质也易受到温度的影响, 随着温度的升高, 载流子热运动剧烈, 造成激子解离, 发光量子产率降低, 光学增益下降, 激光阈值升高<sup>[32]</sup>. 同时, 温度升高会产生晶格热膨胀和晶格振动频率的增加<sup>[6]</sup>, 晶格膨胀使得钙钛矿离子间距拉大, 激子受到晶格的散射作用减小, 导致出射激

光强度提高, 而晶格振动频率增加使得钙钛矿内电子与声子的耦合作用增加, 这种非弹性碰撞导致能量损失, 使得出射激光强度降低, 因此, 温度对钙钛矿的激光行为的影响较为复杂. 北京大学张青教授课题组<sup>[33]</sup>研究了 CsPbBr<sub>3</sub> 纳米线的自发辐射 (SE) 行为与激光行为随温度的变化, 结果如图 3 所示. 研究发现, 温度影响在低温 (78—178 K) 时以晶格热膨胀为主, 而在高温 (195—295 K) 下以电子-声子相互作用为主.

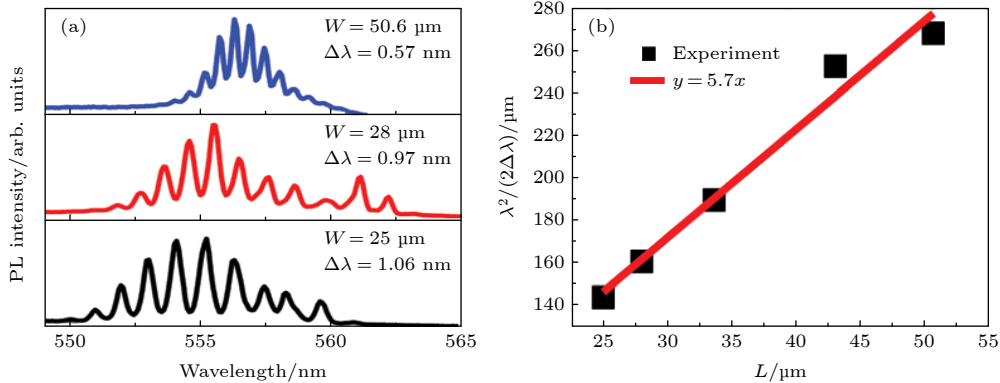


图 2 (a) CH<sub>3</sub>NH<sub>3</sub>PbBr<sub>3</sub> 微片不同宽度 ( $L$ ) 的激光光谱; (b) 微片的宽度与  $\lambda^2/(2\Delta\lambda)$  的拟合曲线 ( $\lambda = 554.4 \text{ nm}$ )<sup>[29]</sup>

Fig. 2. (a) Laser spectra of CH<sub>3</sub>NH<sub>3</sub>PbBr<sub>3</sub> microsheets with different widths ( $L$ ); (b) fitting curve of  $\lambda^2/(2\Delta\lambda)$  versus width of microsheets ( $\lambda = 554.4 \text{ nm}$ )<sup>[29]</sup>.

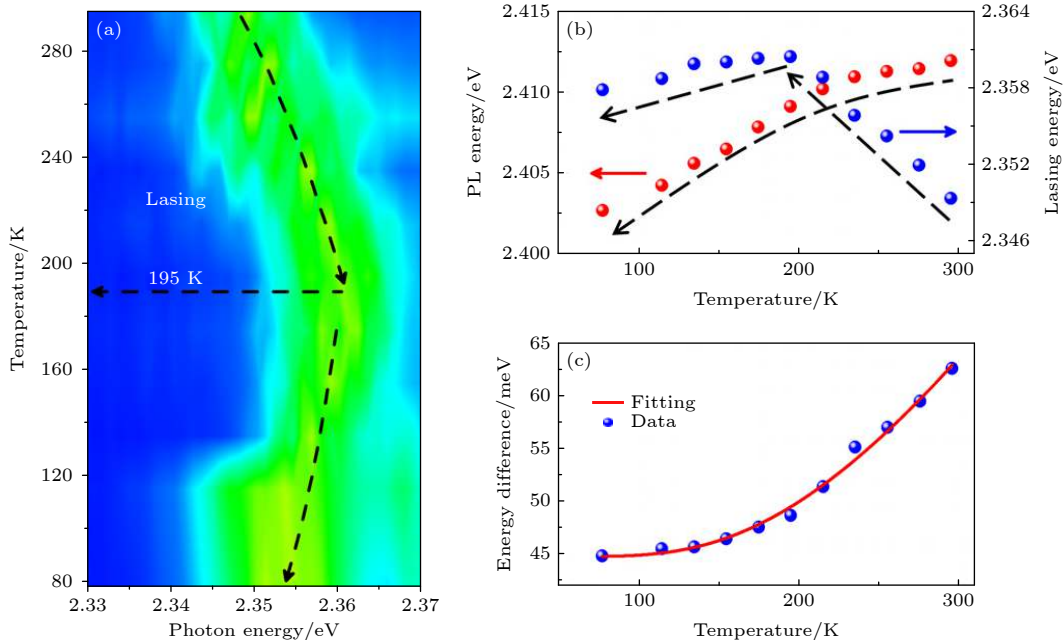


图 3 CsPbBr<sub>3</sub> 纳米线的温度依赖性激光行为 (a) 78—295 K 的不同温度下, 纳米线的 2D 伪色彩图的激光光谱; (b) 提取的 SE (红点) 和激光 (蓝点) 能量随温度变化; (c) SE 与激光峰的能量差在温度从 78 K 增加到 295 K 的变化图. 红色实线为拟合结果<sup>[33]</sup>

Fig. 3. Temperature-dependent lasing behavior of a CsPbBr<sub>3</sub> NW: (a) The lasing spectra of a 2D pseudo-color plot of the NW at different temperatures from 78 K to 295 K; (b) the extracted SE (red dots) and lasing (blue dots) energies as a function of temperature; (c) plot of the change in the energy difference with temperature increasing from 78 K to 295 K. The red solid line is the fitting result<sup>[33]</sup>.

除尺寸与温度影响因素外, 钙钛矿 F-P 腔在不同激发光强下激光行为也有所不同. 如前所述, 钙钛矿激光行为的过程经历 SE 至 ASE 再到 STE, 因此钙钛矿激光的激发强度与发射强度关系呈现 S 形曲线<sup>[34]</sup>. 而在更高激发下激子吸收达到饱和, 载流子浓度增加, 超过 Mott 密度后, 强烈的库仑屏蔽作用使得激子解离为电子-空穴等离子体 (EHP)<sup>[35]</sup>, 同时由于高载流子浓度下的带填充效应, 导致激光模式峰蓝移<sup>[13]</sup>. 美国哥伦比亚大学研究人员<sup>[36]</sup>研究了 CsPbBr<sub>3</sub> 纳米线 (图 4(a) 和图 4(b)) 中的这一激光行为, 并通过图 4(c) 光路测量瞬态反射光谱 (TR) 证明了激光饱和现象与饱和处激子振荡向 EHP 振荡的转变, 并证明了载流子冷却过程和载流子/激子向非简并电子-空穴等离子体 (n-EHP) 及简并电子-空穴等离子体 (d-EHP) 的相变过程, 最终将纳米线激光发射归于 n-EHP 与等离子体基元耦合的受激发射 (载流子动力学模型如图 4(d)).

对于泵浦源对激光行为的影响, 泵浦时间越短, 钙钛矿材料中俄歇过程、陷阱作用、三重态等光损耗的慢过程越难以发生, 目前的钙钛矿 F-P

结构激光多在飞秒脉冲光激发下产生, 不过激光阈值仍在 10 μJ/cm<sup>2</sup> 以上. 室温下连续光泵浦<sup>[37]</sup>的激光阈值仍在数十千瓦量级, 阈值较高, 需进一步降低钙钛矿材料的光损耗过程. 综上, F-P 结构钙钛矿在激光机理研究中起到了十分重要的作用, 其小尺寸也有利于进一步集成应用, 但该类型激光由于钙钛矿材料同时作为增益介质和谐振腔, 直接与外部环境接触, 光学损耗较大, 不利于实际应用. 为将光学损耗降低, 需将钙钛矿材料与外部环境分离, 钙钛矿仅作为增益介质置于微腔中, 选择高品质因子的微腔材料, 制备微腔型 F-P 腔, 提高光束约束作用, 为钙钛矿 F-P 腔激光的进一步发展提供选择.

### 3.2 F-P 微腔钙钛矿激光

F-P 微腔钙钛矿激光中, 钙钛矿材料仅作为增益介质, 以有源层的形式置于多层基底结构之上或 DBR 之间, 在垂直方向实现振荡的平面型激光器, 与自身作为微腔的 F-P 结构钙钛矿材料相比, 光束约束能力较大, 光学损耗较小, 有利于激光应用. F-P 型微腔的结构为不同折射率介质的叠层薄膜<sup>[23,38]</sup>, 依据薄膜干涉原理, 对特定波长的光具有

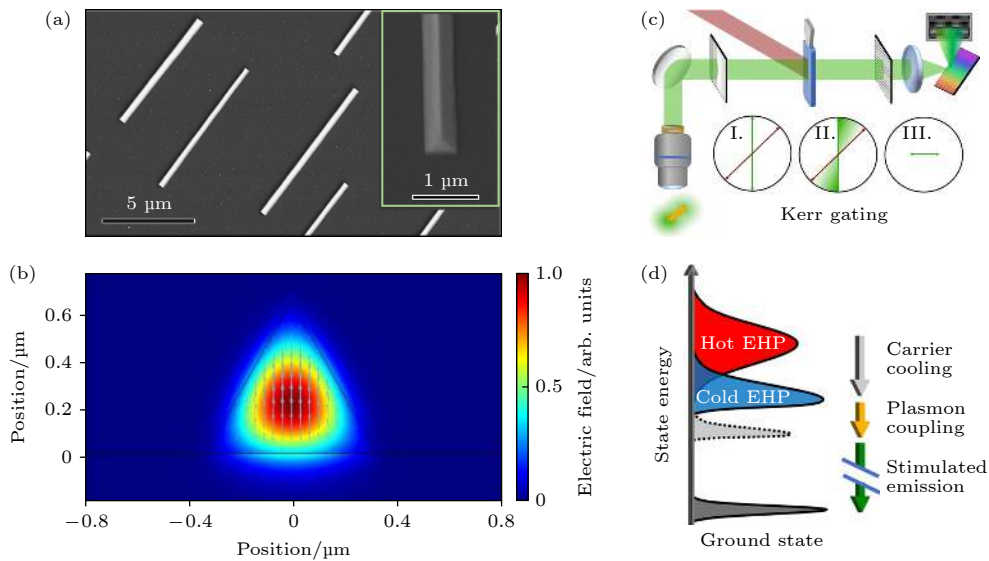


图 4 (a) 在蓝宝石衬底上生长的三棱柱纳米线的扫描电子显微镜图像; (b) 纳米线中最低阶波导模式的有限元模拟图 (电场极化方向由青色箭头表示); (c) 用于时间分辨的 Kerr 门控实验的光学装置的图示. 线性偏振 (I) 在脉冲光穿过 Kerr 介质时变为椭圆偏振光 (II), 经过偏振器变为垂直于原始入射偏振的偏振光 (III); (d) 光激发的载流子动力学过程示意图, 激光来源于冷 EHP 与等离子体基元的耦合的受激发射<sup>[36]</sup>

Fig. 4. (a) Scanning electron microscopy images of triangular nanowires grown on sapphire substrate; (b) FEM simulation of the lowest order waveguiding mode in a nanowire (The electric field polarization is depicted by the cyan arrows); (c) illustration of the optical setup for time-resolved Kerr gating experiment. The linear polarization (I) becomes elliptical (II) as it passes through the Kerr medium with the pump pulse. A final polarizer (III) filters polarization perpendicular to the original incident polarization; (d) cartoon describing the carrier dynamics from photoexcitation which results in a hot electron hole plasma (hot EHP) through carrier cooling to a cold electron hole plasma (cold EHP) finishing with stimulated emission coupled with plasmon emission<sup>[36]</sup>.

高反射率, 目前的反射率  $R$  可达 99% 以上, 如图 5 所示, 因此微腔结构对腔内光子有更好的局域作用,  $\Gamma$  值较大, 激光阈值较低. 同时 DBR 的封装大幅提高了钙钛矿激光的环境稳定性, 光激发下稳定

激光输出可达数十小时<sup>[39]</sup>.

由于钙钛矿薄膜的热导率较低, 温度对钙钛矿 F-P 腔激光的影响较大, 复旦大学陈张海教授课题组<sup>[19]</sup> 制备了  $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$  钙钛矿 DBR 结构,

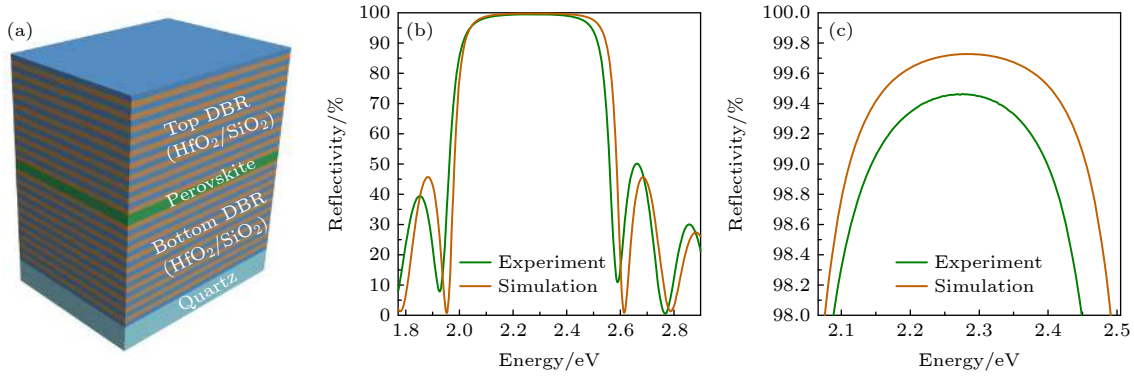


图 5 (a) 钙钛矿 DBR 激光器的示意图结构, DBR 叠层由 10 对  $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$  组成; (b)  $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$  DBR 的实测反射率光谱与设计模拟值匹配较好; (c) 高反射率部分的放大图, 显示峰值反射率为 99.5%, 光谱范围覆盖在 2.145—2.398 eV (517—578 nm)<sup>[38]</sup>  
 Fig. 5. (a) Schematic structure of mixed-cation perovskite DBR laser. The sputtered dielectric DBR stack consists of 10 pairs of  $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ ; (b) measured reflectivity spectrum of a standalone  $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$  DBR showing a reasonably good match with pre-deposition design simulation; (c) zoom-in view of the high-reflection band showing peak reflectivity of 99.5%, and a broad spectral window covering from 2.145 eV to 2.398 eV (517–578 nm) wherein reflectivity exceeds 99%<sup>[38]</sup>.

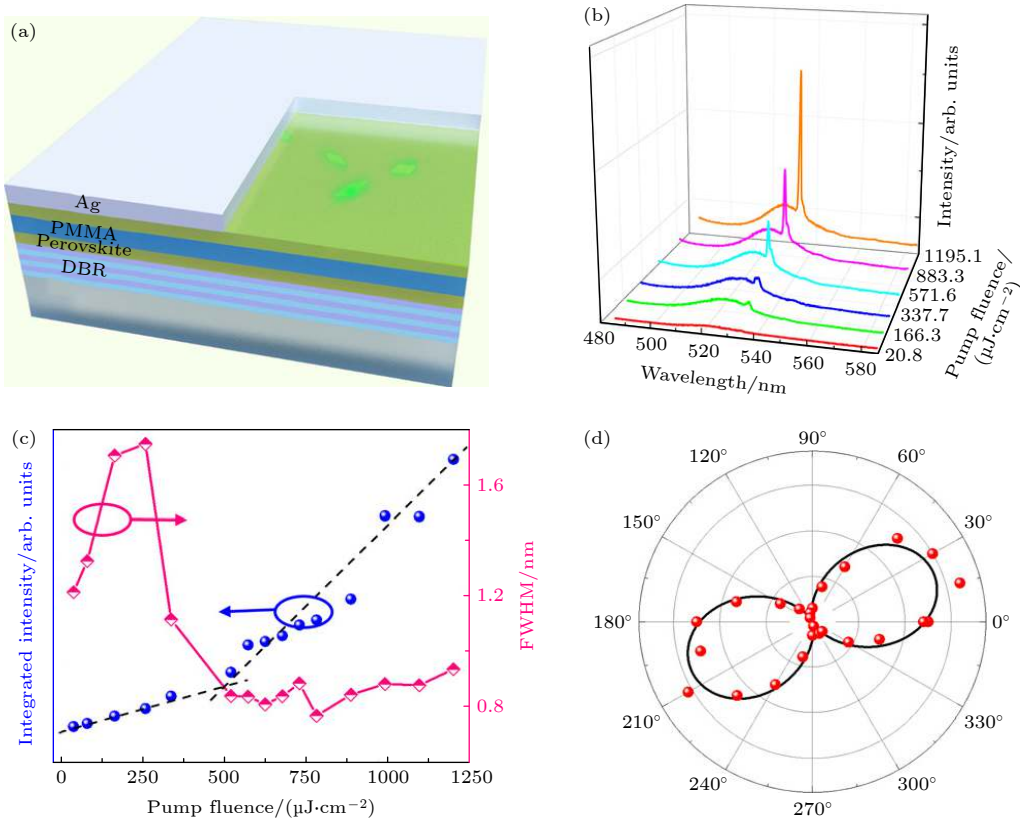


图 6 (a) Ruddlesden-Popper 钙钛矿 DBR 腔体结构示意图; (b) 器件发射光谱随泵浦强度的变化; (c) 腔模式的积分强度强度 (蓝色球) 和半高宽 (粉红色菱形) 与泵浦强度的关系图; (d) 旋转分析仪测得的强度极坐标图 (红球), 黑线为马吕斯定律拟合曲线<sup>[36]</sup>  
 Fig. 6. (a) Schematic diagram of cavity architecture; (b) pump fluence dependence of the emission spectra for the device; (c) the plots of integrated intensity (blue ball) and FWHM (pink diamond) of the cavity mode and the resulting lasing peak as a function of the pump fluence; (d) intensity polar plot through a rotational analyzer (red ball). The black line is the fitting curve from Malus's law<sup>[36]</sup>.



研究了温度对 F-P 微腔钙钛矿激光的影响, 结果发现升温会抑制激子辐射复合, 阈值提高, 半高宽增加, 激光相干性下降. 因此研究人员常采用蓝宝石等热导率较高的材料作为基底, 降低材料热损耗, 提高  $Q$  值. 对于钙钛矿有源层, 可利用钙钛矿薄膜本身具有的多相共存, 不同相之间的能量和激子传输能够促进粒子数在最终相的积累, 快速实现粒子数反转, 提高钙钛矿薄膜的增益. 西安交通大学吴朝新教授课题组<sup>[39]</sup>利用 CsPbBr<sub>3</sub> 薄膜中立方相与斜方相间的能量传递提高了薄膜中的激子传

输速率, 增大了薄膜的增益系数, 制备的 DBR 结构在 400 nm 飞秒激光泵浦下获得最低阈值低至 1.7  $\mu\text{J}/\text{cm}^2$  的绿色激光. 北京大学冉广照教授课题组<sup>[40]</sup>利用 Ruddlesden-Popper (RP) 钙钛矿 (PEA)<sub>2</sub>Cs <sub>$n-1$</sub> Pb <sub>$n$</sub> Br <sub>$3n+1$</sub>  微晶薄膜不同  $n$  相间的能量传输提高增益, 制备的 DBR 结构在接近连续泵浦的 8 ns 脉冲光激发下产生室温阈值为 500  $\mu\text{J}/\text{cm}^2$  的激光输出, 如图 6 所示. 同时由于多相混合, 制备的钙钛矿薄膜具有光学各向异性, 产生的激光具有较高的偏振度 (图 6(d)).

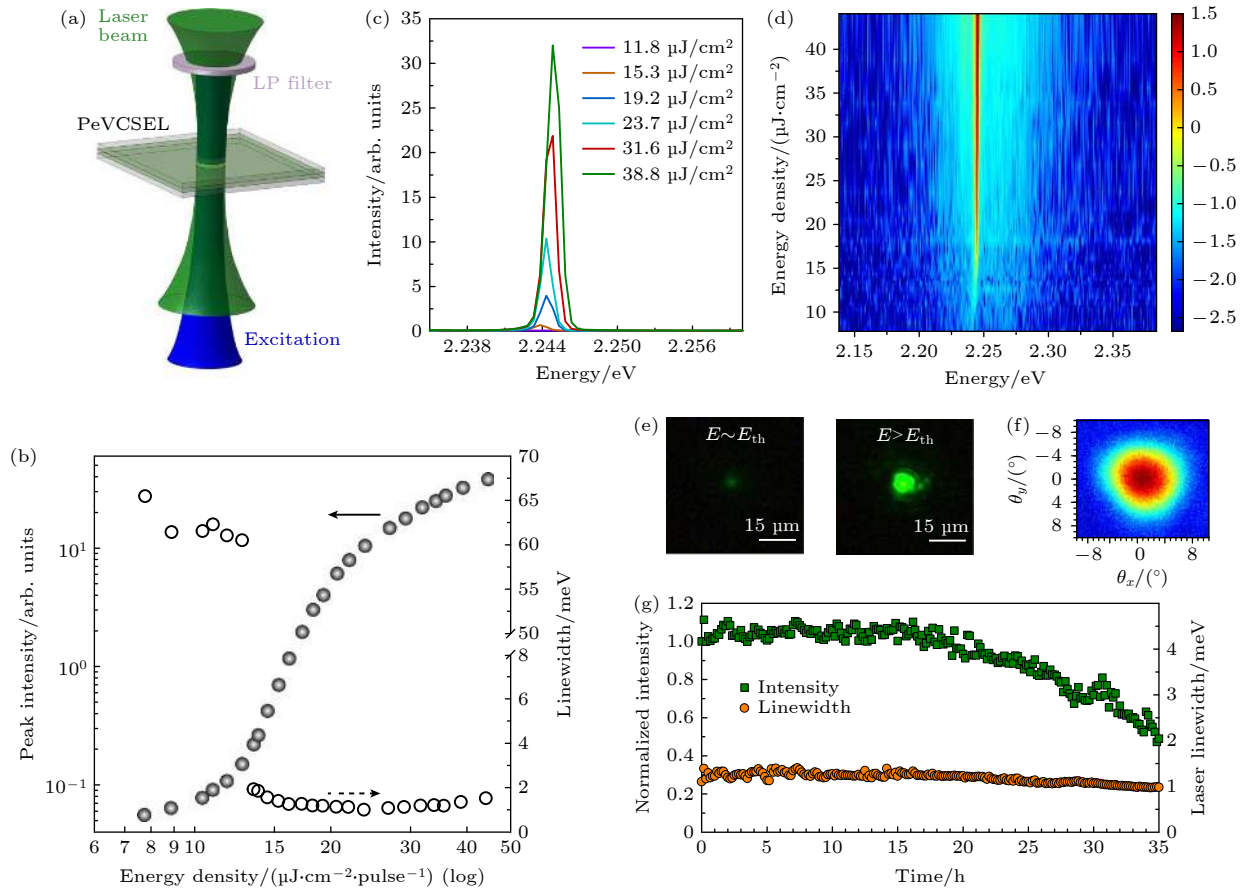


图 7 (a) 激光泵浦钙钛矿激光器的示意图 (脉冲激光波长为 3.493 eV,  $\tau_{\text{pulse}} = 0.34$  ns, 重复频率 1 kHz); (b) 以对数值表示的器件光输出, 阈值能量密度为  $13.5 \pm 1.4 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ , 空圆圈表示发射光谱的半高宽; (c) 不同激发强度下的发射光谱, 观察到 2.244 eV ( $\lambda = 552.5$  nm) 的单模激光, 半高宽为 0.996 meV ( $\Delta\lambda = 0.245$  nm); (d) 在对数值下在不同激发强度下器件发射的伪彩色图, 显示了单模操作和大背景抑制比 ( $> 20$  dB); (e) 泵能量密度接近或高于阈值时的器件的近场图像; (f) 器件发射的远场方向图, 在横向发散约  $5^\circ$ ; (g) 相同泵浦下 (1.5 倍阈值强度) 测得的器件寿命. 绿色正方形为激光输出强度, 橙色圆圈为激光峰半高宽, 显示了持续的激光操作<sup>[41]</sup>

Fig. 7. (a) Schematic structure of a vertically pumped perovskite laser with a long-pass filter to block the pump residue. The pulsed pump source is a compact diode-pumped solid state laser (3.493 eV,  $\tau_{\text{pulse}} = 0.34$  ns, 1 kHz repetition rate). (b) Device light output with increasing pump fluence expressed in a log-log plot with threshold energy density of  $13.5 \pm 1.4 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ . The empty circles record the FWHM linewidth of the emission spectrum. (c) Emission spectra under different excitation levels. Spectrally coherent single-mode lasing at 2.244 eV ( $\lambda = 552.5$  nm) with FWHM linewidth of 0.996 meV ( $\Delta\lambda = 0.245$  nm) is observed. (d) Pseudo-color plot of laser emission under different levels of excitation in a logarithmic scale demonstrating the single mode operation and large background suppression ratio ( $> 20$  dB). (e) Near-field images of a device with pump energy densities near and above the threshold. (f) Far-field pattern of laser emission, with  $\sim 5^\circ$  divergence in the transverse plane. (g) Device (longevity) lifetime measured under the same subnanosecond pumping source (1.5 times the threshold intensity). Green squares monitor the lasing output intensity, while the orange circles track the FWHM linewidth of the emission, indicating persistent lasing operation<sup>[41]</sup>.

高激发下钙钛矿材料中的激子会发生解离, 导致实际产生激射的激子数量减少,  $Q$  值降低, 激光阈值升高. 美国布朗大学研究人员<sup>[41]</sup>采用混合阳离子钙钛矿  $\text{Cs}_{0.17}\text{FA}_{0.83}\text{PbBr}_3$  薄膜降低上述影响, 该钙钛矿材料的激子结合能较大, 能有效抑制高激发下的激子解离, 产生激子增益的激光发射 (图 7), 激光阈值较相同条件下的  $\text{FAPbBr}_3$  降低了 30%, 同时光稳定性和环境稳定性有所提升 (图 7(g)). 另外, 也可采用具有高发光量子产率的量子点、纳米线等, 提高材料增益, 实现低阈值激光<sup>[42]</sup>. 不过, 虽然 F-P 微腔有效降低了钙钛矿激光阈值, 但其尺寸较大, 集成应用仍具有挑战.

#### 4 强耦合 F-P 腔钙钛矿极化子的产生与激光

随着钙钛矿 F-P 腔激光的不断发展, 激光阈值不断降低. 但传统弱耦合下的钙钛矿激光的产生需要满足粒子数反转的条件, 激光阈值难以进一步降低. 而强耦合下的极化子激光无需粒子数反转, 可实现超低阈值的钙钛矿激光, 因此强耦合极化子激光也成为当下钙钛矿激光发展的热点. 如前所述, 当满足条件  $\hbar\Omega > |(\gamma_c - \gamma_x)/2|$  时, F-P 腔光子与钙钛矿激子产生强耦合作用, 形成激子-极化子准粒子, 如图 8 所示, 形成的极化子大多位于 LPB 上 (UPB 上的极化子并不稳定, 会在热弛豫作用下, 在激子与光子能量共振处跃迁至 LPB), 并位于激子与光子能量共振值处, 由于随能量降低 LPB 曲线趋向于光子色散曲线, 在形成的极化子数量较少时, 无法受到声子散射向低能量移动, 进而在 LPB 上的能量共振值邻域内聚集, 这一现象被称

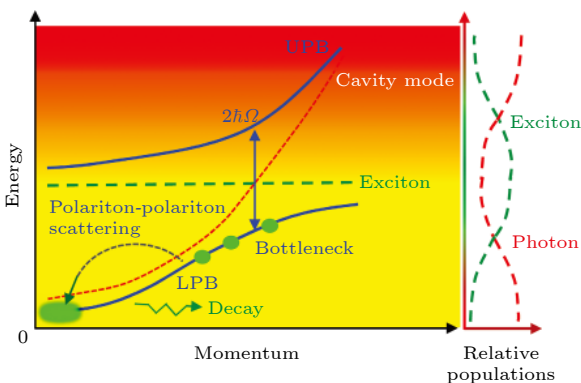


图 8 腔模式、激子、极化子的色散曲线, 极化子激光的过程示意以及极化子分支上激子与光子数量比例<sup>[43]</sup>

Fig. 8. Dispersion, dynamic process, and the photon and exciton fractions of polariton branches<sup>[43]</sup>.

为极化子瓶颈效应<sup>[43]</sup>, 瓶颈效应的出现阻碍了极化子的 BEC 过程. 但随着光激发增强, 极化子数量不断增加, 聚集到一定值后, 极化子与极化子之间的散射作用变得明显, 极化子-极化子的强烈散射作用会使瓶颈处的极化子迅速回至基态, 实现 BEC 过程, 同时在回至基态过程中向外辐射光子, 即实现极化子激光<sup>[44]</sup>. 因此, 强耦合下的激光来源于极化子的受激散射, 与弱耦合下依赖粒子数反转的受激辐射和 ASE 不同. 此外, 强耦合的极化子凝聚体由于不受热德布罗意波长限制而具有远距离空间相干性<sup>[45]</sup>, 这也是强耦合出现的重要特征之一.

#### 4.1 F-P 结构钙钛矿极化子的产生与激光

极化子激光最早在 III-V 族和 II-VI 族半导体微腔中实现, 但传统无机发光半导体激子结合能较小, 难以在室温下产生极化子. 而钙钛矿材料激子结合能较大, 激子俄歇寿命较短, 有利于在室温下产生稳定的极化子. 目前已在具有 F-P 结构的钙钛矿纳米线、纳米片等结构中实现了极化子激光, 北京大学张青教授课题组<sup>[46]</sup>使用  $\text{CsPbBr}_3$  纳米线在 400 nm 飞秒激光泵浦下, 实现阈值高达  $8 \mu\text{J}/\text{cm}^2$  的极化子激光. 美国哥伦比亚大学研究人员<sup>[47]</sup>同样使用  $\text{CsPbBr}_3$  纳米线, 在 450 nm 连续光泵浦下实现阈值为  $6 \text{ kW}/\text{cm}^2$  的极化子激光, 如图 9 所示.

为证明极化子的产生, 研究人员常通过数值模拟的  $E-K$  曲线与实验光谱所测得的模式能量与  $\pi/L$  值关系相比较, 说明激光的产生来源于极化子<sup>[48]</sup>, 并通过角分辨光谱 (ARPL) 观察阈值处极化子的 BEC 过程<sup>[49]</sup>. 在 F-P 结构钙钛矿 (钙钛矿纳米线) 中产生极化子并实现极化子激光的关键在于光子与激子合适的耦合强度, 由于 F-P 结构钙钛矿对光子的束缚能力较弱, 产生的激光常包含光子激光成分 (来自未耦合的激子复合) 与极化子激光成分, 因此激子与光子耦合强度 (后文写为耦合强度) 越高, 激光中的极化子激光成分越高, 激光阈值越低. 耦合强度受到成分、温度、尺寸和激发强度的影响, 合适的影响因素将有助于耦合强度的不断提高. 首先耦合强度对卤素成分敏感, 卤素成分由 I 到 Cl, 钙钛矿激子结合能不断增加, 钙钛矿激子浓度增加, 耦合强度增大<sup>[50]</sup>. 其次, 如前所述, F-P 腔尺寸也会影响耦合强度, 北京大学张青教授课题组<sup>[46]</sup>从实验上验证了  $\text{CsPbBr}_3$  中 Rabi 劈裂能与 F-P 腔尺寸的关系, 随着纳米线尺寸的减小, 振荡强度提高, 耦合强度增大, 如图 10 所示, 最终得到了高

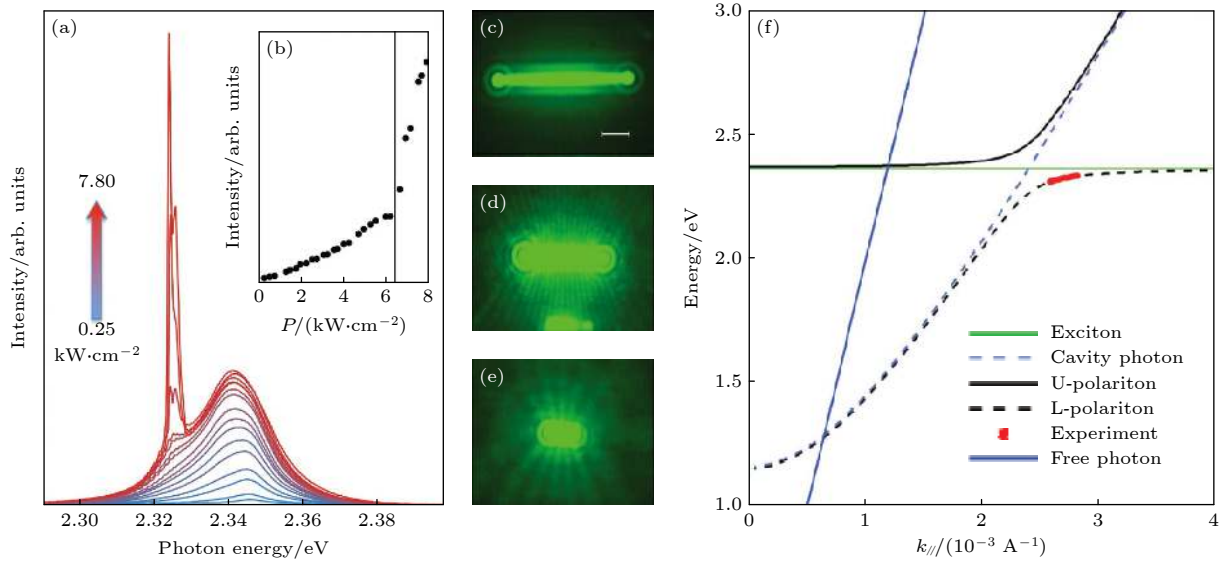


图 9 (a) 20  $\mu\text{m}$  的纳米线 PL 光谱图, 泵浦强度范围为 0.25—7.80  $\text{kW}/\text{cm}^2$ ; (b) 积分能量强度与泵浦强度的关系, 阈值为 6  $\text{kW}/\text{cm}^2$ ; (c)—(e) 20, 14 和 5  $\mu\text{m}$  的纳米线阈值处的极化子激光荧光图; (f) 14  $\mu\text{m}$  纳米线腔光子 (蓝线虚线) 与激子 (绿线) 在 77 K 下的能量色散图, 红点表示 LPB 瓶颈处实验测得的极化子模式<sup>[46]</sup>

Fig. 9. (a) PL spectra of a 20  $\mu\text{m}$  long NW obtained with increasing excitation light power densities in the range of 0.25–7.80  $\text{kW}/\text{cm}^2$ . Inset (b) shows the integrated power density plotted against the power density, showing threshold near 6  $\text{kW}/\text{cm}^2$ . The right side shows fluorescence images above the polariton lasing threshold for NWs with length of (c) 20  $\mu\text{m}$ , (d) 14  $\mu\text{m}$  and (e) 5  $\mu\text{m}$ . The scale bar in (c) is 5  $\mu\text{m}$ . (f) Dispersions of the cavity photon (blue dashed) and exciton (green) at 77 K of the 14  $\mu\text{m}$  long NW without coupling, the red dots show the experimental CW polariton modes near the bottleneck region of the LPB<sup>[46]</sup>.

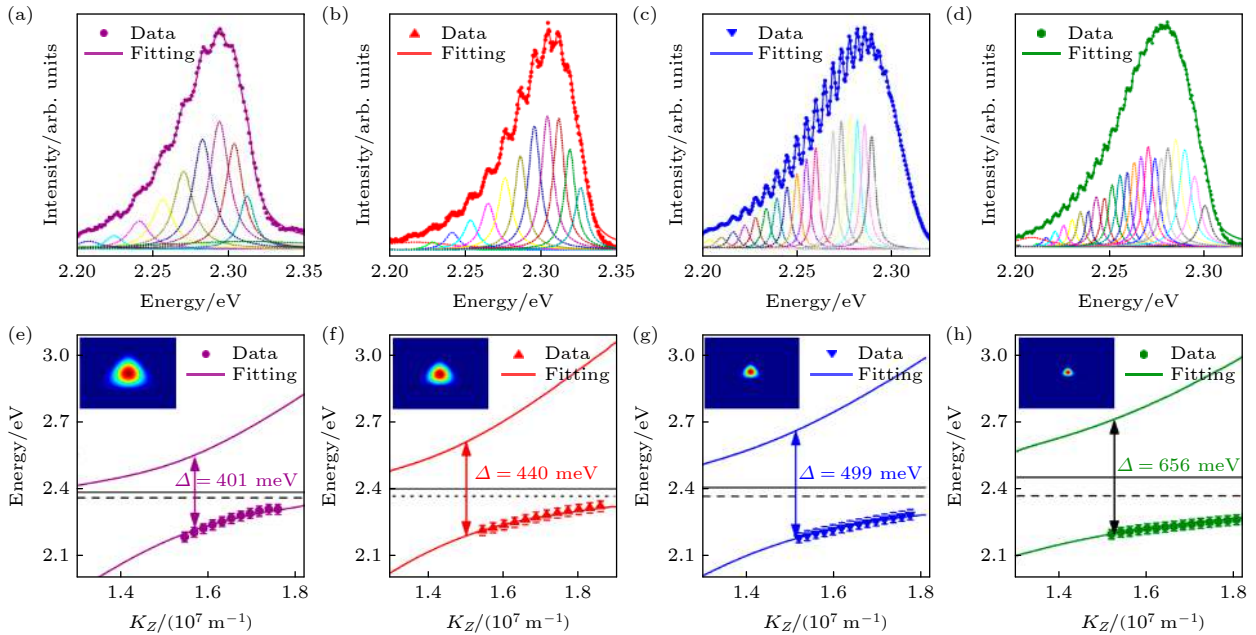


图 10 CsPbBr<sub>3</sub> 纳米线尺寸依赖的耦合强度 (a)—(d) 宽度为 3.31, 1.99, 1.19 和 0.78  $\mu\text{m}$ , 长度为 11.01, 14.02, 16.41 和 20.77  $\mu\text{m}$  的纳米线从一端激发在另一端收集的发光光谱. 光谱在洛伦兹拟合下展现出多个 F-P 模式峰; (e)—(f) 上方对应的纳米线 Z 方向的能量-波矢曲线, 内部图片为对应纳米线横向电场分布图<sup>[50]</sup>

Fig. 10. Size-dependent light-matter coupling strength in CsPbBr<sub>3</sub> micro/nanowires: (a)–(d) Emission spectra acquired from the waveguided end and excited from the other end of CsPbBr<sub>3</sub> nanowires with width of 3.31, 1.99, 1.19 and 0.78  $\mu\text{m}$  and lengths of 11.01, 14.02, 16.41 and 20.77  $\mu\text{m}$ , respectively. The spectra show multiple Fabry-Pérot interference peaks which have been fitted by Lorentzian line shapes to determine the resonance energies. (e)–(f) Corresponding energy-wavevector dispersion curves in the Z-direction (along nanowire length) of above four CsPbBr<sub>3</sub> nanowires, respectively. The insets are normalized electric field distribution at the cross-section of these four CsPbBr<sub>3</sub> nanowires<sup>[50]</sup>.

达 656 meV 的劈裂能. 同时耦合强度增加引起钙钛矿材料光吸收系数的增加, 有助于激光阈值的进一步减小<sup>[51]</sup>.

同时温度升高也会带来耦合强度的变小, 湖南师范大学唐东升教授课题组<sup>[52]</sup>在 CsPbBr<sub>3</sub> 微米线中, 发现极化子发光模式随温度升高红移, 通过研究微米线端面光致发光寿命随温度的变化, 发现寿命随温度升高而增加, 这一现象与光沿纳米线传播过程中的复杂的重吸收过程 (非弹性散射过程) 相关, 因而导致光子振荡强度降低, 耦合强度减小. 激发强度也将影响耦合强度大小. 如前所述, 高激发下, 钙钛矿材料中的激子发生解离, 导致耦合强度下降<sup>[53]</sup>, 对于激子结合能较小的钙钛矿材料, 将产生来自 EHP 的光子激光而非极化子激光<sup>[54]</sup>. 因此应通过尺寸设计和量子阱结构设计<sup>[55,56]</sup>, 提高钙钛矿材料中的耦合强度和极化子-极化子散射作用<sup>[57]</sup>, 将受激散射的阈值降至 Mott 密度以下, 同时提高钙钛矿材料的光稳定性. 通过以上讨论, 我们总结了 F-P 结构钙钛矿材料极化子激光的优势和耦合强度影响因素, 不过与 F-P 结构钙钛矿激光一样, 由于钙钛矿材料与外界环境直接接触, 材料对光子约束作用较小, 光子振荡强度不高, 难以实现耦合强度更高、更稳定的极化子. 因此需要使用 DBR 等微腔结构实现更稳定的极化子.

#### 4.2 F-P 微腔钙钛矿极化子的产生与激光

利用 DBR 微腔, 可有效提高光束约束因子,

因此有利于极化子的产生和高极化子激光成分的实现<sup>[49]</sup>. 对于微腔结构的极化子研究由来已久, 在传统无机半导体微腔及有机半导体微腔中均已实现极化子激光, 但传统无机半导体微腔需要复杂的外延生长技术, 而有机半导体中的 Frenkel 型激子使得极化子与极化子间的散射作用较小, 导致受激散射阈值较高. 钙钛矿材料能够在 DBR 微腔中实现较高成分的极化子, 以及量子阱结构下有效的 BEC 过程. 新加坡南洋理工大学熊启华教授课题组<sup>[58]</sup>合成了较大尺寸 CsPbBr<sub>3</sub> 纳米片并放入 DBR 结构中, 如图 11 所示, 实现了低  $Q$  值下的阈值为 12  $\mu\text{J}/\text{cm}^2$  的极化子激光, 与  $Q$  值相当的 DBR 结构光子激光相比, 阈值有所下降. 作者通过非平衡凝聚模型研究了阈值附近的 PL 峰的蓝移变化, 揭示了极化子实现激光输出的过程中, 经历了阈值以下极化子-激子相互作用到阈值以上极化子-极化子散射作用的转变 (图 11(c)).

DBR 结构中同时存在腔模式和布拉格模式<sup>[59]</sup>, 在 RP 钙钛矿作为有源层的 DBR 结构中, 发现了钙钛矿激子与腔模式光子以及 DBR 中的布拉格模式光子的耦合杂化态, 耦合杂化态的出现使得极化子占据状态分布发生变化, 因此具有更小的有效质量和更长寿命, 有利于实现低阈值极化子激光. 其次, 与 F-P 结构钙钛矿极化子激光类似, 微腔结构极化子的状态会受到有源层厚度的影响. 北京大学张青教授课题组<sup>[60]</sup>研究发现, 当 DBR 之间的 CsPbBr<sub>3</sub> 薄片厚度较小时, 腔内振荡的光子能量增大, 激子

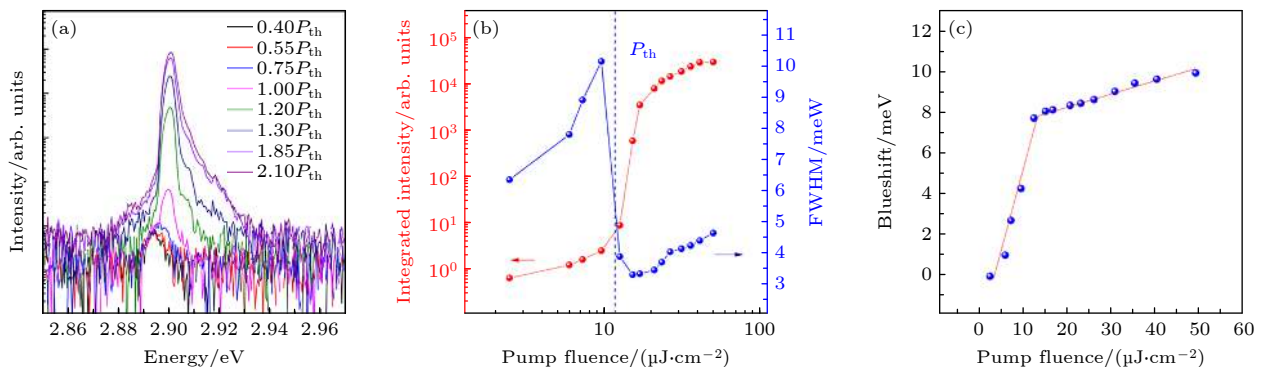


图 11 CsPbCl<sub>3</sub> 微腔极化子激光 (a) 不同泵浦强度下的基态发光光谱; (b) 基态发光强度与半高宽与泵浦强度的关系图, 半高宽的变化拐点位于阈值  $P_{th}=12 \mu\text{J}/\text{cm}^2$  附近; (c) 极化子发光能量蓝移与泵浦强度关系图, 阈值处蓝移趋势发生变化, 从极化子-激子相互作用转变为极化子-极化子相互作用<sup>[58]</sup>

Fig. 11. Characterizations of CsPbCl<sub>3</sub> microcavity polariton lasing: (a) Ground-state emission spectra under different pumping fluences; (b) ground-state emission intensity and full width at half maximum as a function of pump fluence. A line width narrowing occurs near the threshold of  $P_{th}=12 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ , along with a sharp increase of emission intensity; (c) energy blueshift with respect to the polariton emission energy at the lowest pump fluence as a function of pump fluence. The blueshift trend below the threshold is attributed to polariton-reservoir interaction while the trend above the threshold corresponds to polariton-polariton interaction<sup>[58]</sup>.

与光子能量的负失谐值减小(失谐值 $\Delta$ 负向减小),极化子的 LPB 曲线更靠近激子色散曲线,形成类激子的极化子,极化子-极化子散射作用增加,BEC 过程容易实现(图 12(a)),激光阈值随之减小(图 12(b)),阈值均在  $1.0 \mu\text{J}/\text{cm}^2$  以下,低于当下钙钛矿 DBR 光子激光,阈值达到最低.不过,由于光子与激子在波矢空间的重叠减小,耦合强度有所减小(图 12(b)),阻碍了阈值的进一步降低.同时由于 DBR 结构中的极化子成分极高,因此耦合强度与激光阈值的关系与 F-P 结构钙钛矿极化子激光不同.当钙钛矿薄片厚度较大时,光子能量减小,激子与光子能量负失谐值增加,LPB 曲线倾向于光子色散曲线,

形成类光子的极化子,极化子-极化子散射作用减小,激光阈值增加(图 12(b)),激子与光子的耦合强度有所上升,极化子倾向于留在由横向约束确定的局部模式中.当薄片厚度继续增加,负失谐能进一步增大,F-P 腔极化子模式逐渐消失,本征 PL 峰占据优势,如图 12(c) 所示,即发光来源于钙钛矿薄片材料本身,激光模式变为 WGM 模式.因此,应设计合适的有源层厚度,获得阈值较低、较为稳定的极化子激光.

新加坡南洋理工大学熊启华教授课题组<sup>[45]</sup>在 DBR 间采用特殊的  $\text{CsPbBr}_3$  微柱阵列,构建了具有强晶格周期势的钙钛矿材料结构,实现了室温下

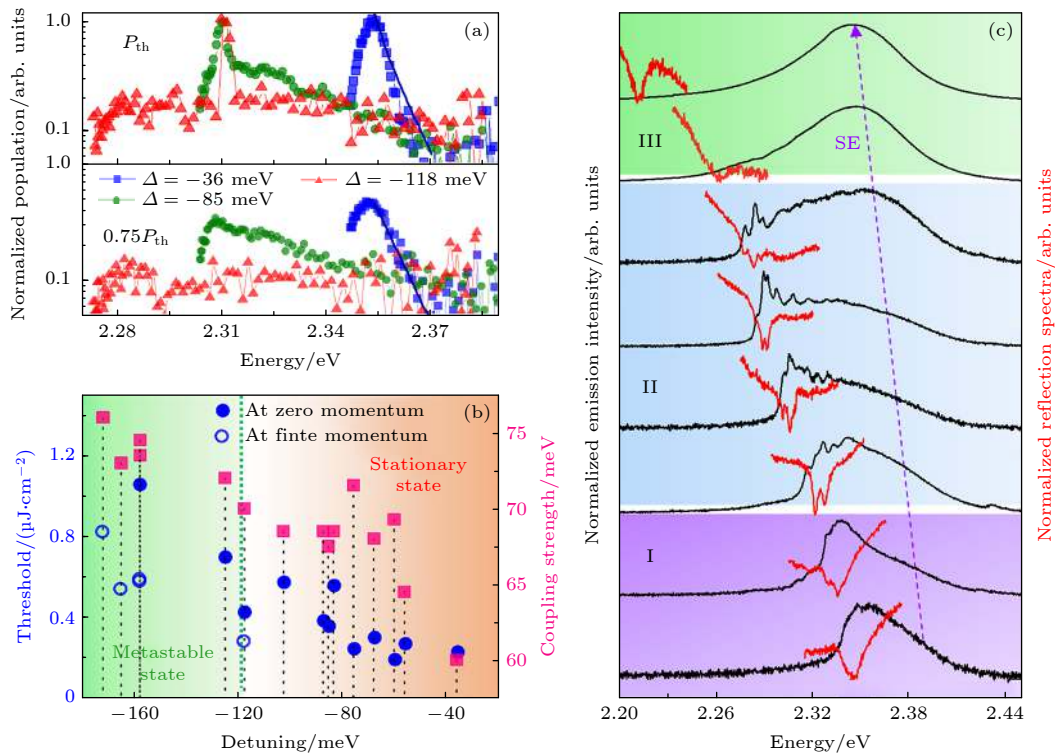


图 12 不同失谐值下极化子在不同能量和动量的分布 (a) 失谐值为  $-36$  meV (蓝色方块)、 $-85$  meV (绿色圆圈)、 $-118$  meV (红色三角) 的极化子数量(取对数)在低于阈值和阈值处不同能量分布,其中  $-36$  meV 失谐值下的分布可在阈值下和阈值处拟合为玻尔兹曼分布和玻色分布; (b) 极化子凝聚的阈值与耦合强度与失谐值的关系,不同颜色区域表示在亚稳态(零动量)和稳态(有限动量)产生的极化子凝聚; (c) 钙钛矿 DBR 结构的发光光谱(低于阈值,黑色线)和反射光谱(红色线),从下到上钙钛矿厚度不断增加(负失谐能增加).区域 I 为  $-28$  和  $-56$  meV,区域 II 为  $-64$ ,  $-80$ ,  $-103$  和  $-114$  meV,区域 III 为  $-129$  和  $-182$  meV<sup>[60]</sup>

Fig. 12. Polariton distributions at different energy and momentum with different detuning energy: (a) Polariton population (log scale) versus energy at threshold and below threshold for detuning energies of  $-36$  (blue squares),  $-85$  (green circles), and  $-118$  meV (red triangles), respectively. The values are normalized to the population of the emission peak at the threshold. The polariton population at a detuning energy of  $-36$  meV can be fitted (blue solid line) using the Maxwell-Boltzmann distribution below threshold or Bose-Einstein distribution at threshold; (b) threshold (blue dots and circles) of the polariton condensation and corresponding coupling strength (pink squares) as a function of detuning energy. Two different regions indicated by different colors of the background and green dash line represent detuning for generating polariton condensation at stationary (at finite momentum) and metastable states (zero momentum); (c) normalized emission (below threshold, black solid line) and reflection spectral (red solid line) of perovskite/DBR cavity with increasing perovskite thickness (also the more negative detuned energy) from bottom to up. Based on different relaxation processes of polaritons at different detuning energies, three different regions (I-III) are introduced. Region I:  $\Delta = -28$  and  $-56$  meV. Region II:  $\Delta = -64$ ,  $-80$ ,  $-103$ , and  $-114$  meV. Region III:  $\Delta = -129$  and  $-182$  meV<sup>[60]</sup>.

的极化子激光, 并通过迈克尔逊干涉仪观察了极化子在阈值附近的干涉条纹, 发现了极化子发光长达 12  $\mu\text{m}$  距离的远程空间相干性, 这得益于较强的晶格周期势将极化子限制在晶格位点处相干运动. 除脉冲光激发外, 微腔结构也实现了室温下连续光泵浦的极化子激光, 北京大学冉广朝教授课题组<sup>[61]</sup>制备了  $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbBr}_3$  单晶钙钛矿薄膜, 薄膜激子寿命长达 426 ns, 因此激子线宽较小, 更易实现强耦合, 获得阈值极低的极化子激光.

## 5 结 语

综上所述, 本文总结了铅卤钙钛矿 F-P 腔激光的研究进展, 介绍了 F-P 腔的模式、品质因子以及强耦合的产生条件, 将 F-P 腔钙钛矿激光按产生机理分为弱耦合和强耦合两个方面. 在弱耦合部分, 讨论了 F-P 结构钙钛矿激光和 F-P 微腔钙钛矿激光的激光行为受尺寸、温度、激发光强度等的影响, 介绍了钙钛矿激光的产生机理以及降低阈值的优化策略. 而在强耦合部分, 讨论了极化子激光的产生和特点, 以及激光特性与耦合强度受腔尺寸、入射光等的影响. 虽然影响弱耦合下光子激光和强耦合下极化子激光的诸多因素已被确定, 且用于提高增益、降低损耗、提高耦合强度和受激散射作用的优化策略已被提出, 但是极化子的实现虽降低了钙钛矿 F-P 腔激光的阈值, 但降低幅度较小, 这与钙钛矿材料中复杂的激子态以及缺陷捕获、俄歇过程、激子湮灭等过程有关. 因此 F-P 腔激光机理和极化子凝聚过程仍需进一步研究. 首先, 钙钛矿材料在高激发下易出现激子吸收饱和, 激子 Mott 相变, 在强库仑屏蔽作用下解离为关联的 EHP, 激子增益显著下降, 强耦合下极化子耦合作用下降. 为此, 研究人员选择了激子结合能大、不易发生解离的 RP 相钙钛矿, 但此类材料在高激发下存在严重的激子俄歇过程和激子-激子湮灭过程 (EEA), 其影响激光行为的具体过程尚不清晰. 有研究表明钙钛矿材料中的 EEA 过程与材料尺寸相关, 因此通过尺寸控制抑制 EEA 过程将是提高钙钛矿激光性能的有效途径. 同时该类钙钛矿在高激发下三重态激子数量增加, 三重态-单重态激子猝灭 (STA) 过程使得单重态激子数量下降, 但通过有机长链的三重态能级调节促进钙钛矿层与有机长链层三重态间激子传输, 可有效降低钙钛矿层的三重态激子

数量. 因此有机长链的选择以及特殊有机分子的加入将会有效提高钙钛矿单重态激子数量, 降低激光阈值. 同时三重态激子与光子耦合产生的极化子以及 BEC 过程尚需进一步研究. 第二, 钙钛矿材料稳定性较差, 在连续光泵浦下, 钙钛矿材料的激光过程极易受到水氧以及离子迁移产生的陷阱作用、热效应引起的结构相变等影响, 影响机制尚需进一步研究. 同时当下提出的钙钛矿激光器稳定性提高策略一定程度上牺牲了钙钛矿材料优异的光吸收, 因此仍需发展更加有效的稳定性提高策略, 如在钙钛矿表面沉积较薄的  $\text{Al}_2\text{O}_3$  薄膜, 采用有机长链钝化钙钛矿材料表面, 设计特殊量子阱结构阻碍离子迁移等. 第三, 在极化子激光中, 极化子的 BEC 过程或受激散射作用十分重要, 但这一过程中的声子作用尚不清晰, 极化子-极化子散射过程中的声子散射影响以及极化子与声子的耦合作用需进一步探究. 同时钙钛矿材料中存在的多种激子状态, 均可能与光子耦合形成极化子, 不同激子状态产生的极化子对最终受激散射过程的影响也需探讨. 最后, 钙钛矿激光正在不断努力向电泵浦激光发展, 已有研究人员尝试使用 LED 等器件结构实现电注入对光泵浦激光的调节, 但影响甚微. 同时电泵浦钙钛矿激光将面临高注入下的焦耳热、电场致猝灭、电子与空穴的非平衡注入和俄歇复合等诸多挑战, 需要设计有效的冷却途径, 如选择热导率较高的基底、设计特殊散热结构或制备更薄的钙钛矿有源层, 其次需要选择更加合适的电子注入和空穴注入材料, 最后仍需生长高质量的钙钛矿材料. 铅卤钙钛矿 F-P 腔激光未来仍有较大发展潜力, 有望成为下一代激光光源, 推动光电器件、逻辑器件、非线性光学器件等器件应用的进一步发展, 以及集成光路、光通信、光纤等技术的革新.

## 参考文献

- [1] Liao Q, Jin X, Fu H B 2019 *Adv. Opt. Mater.* **7** 1900099
- [2] Min H, Kim M, Lee S U, Kim H, Kim G, Choi K, Lee J H, Seok S I 2019 *Science* **366** 749
- [3] Xu W D, Hu Q, Bai S, Bao C X, Miao Y F, Yuan Z C, Borzda T, Barker A J, Tyukalova E, Hu Z J, Kawecki M, Wang H Y, Yan Z B, Liu X J, Shi X B, Uvdal K, Fahlman M, Zhang W J, Duchamp M, Liu JM, Petrozza A, Wang J P, Liu LM, Huang W, Gao F 2019 *Nat. Photonics* **13** 418
- [4] Zhang Y, Lim C K, Dai Z, Yu G, Haus J W, Zhang H, Prasad P N 2019 *Phys. Rep.* **795** 1
- [5] Xing G C, Mathews N, Lim S S, Yantara N, Liu X F, Sabba D, Gratzel M, Mhaisalkar S, Sum T C 2014 *Nat. Mater.* **13**

- [6] Wang L, Dong Y, Gao S, Chen K Y, Fang F C, Jin G Y, 2019 *Chin. Opt.* **12** 993 (in Chinese) [王兰, 董渊, 嵩高, 陈奎一, 房法成, 金光勇 2019 *中国光学* **12** 993]
- [7] Li G H, Chen K Q, Cui Y X, Zhang Y P, Tian Y, Tian B N, Hao Y Y, Wu Y C, Zhang H 2020 *Adv. Opt. Mater.* **8** 1902012
- [8] Liu Y, Siron M, Lu D, Yang J J, dos Reis R, Cui F, Gao M Y, Lai M L, Lin J, Kong Q, Lei T, Kang J, Jin J B, Ciston J, Yang P D 2019 *J. Am. Chem. Soc.* **141** 13028
- [9] Fu Y P, Zhu H M, Stoumpos C C, Ding Q, Wang J, Kanatzidis M G, Zhu X Y, Jin S 2016 *ACS Nano* **10** 7963
- [10] Lou H R, Ye Z Z, He H P 2019 *Acta Phys. Sin.* **68** 36 (in Chinese) [楼浩然, 叶志镇, 何海平 2019 *物理学报* **68** 36]
- [11] Lei L, Seyitliyev D, Stuard S, Mendes J, Dong Q, Fu X Y, Chen YA, He S L, Yi X P, Zhu L P, Chang CH, Ade H, Gundogdu K, So F 2020 *Adv. Mater.* **32** 1906571
- [12] Doherty T A S, Winchester A J, Macpherson S, Johnstone D N, Pareek V, Tennyson E M, Kosar S, Kosasih F U, Anaya M, Abdi-Jalebi M, Andaji-Garmaroudi Z, Wong E L, Madeo J, Chiang Y H, Park J S, Jung Y K, Petoukhoff C E, Divitini G, Man M K L, Ducati C, Walsh A, Midgley P A, Dani K M, Stranks S D 2020 *Nature* **580** 360
- [13] Gunnarsson W B, Rand B P 2020 *Appl. Mater.* **8** 030902
- [14] Huo C X, Wang Z M, Li X M, Zeng H B 2017 *Chin. Opt.* **44** 120 (in Chinese) [霍成学, 王子明, 李晓明, 曾海波 2017 *中国激光* **44** 120]
- [15] Huang S H, Liu Z Z, Du J, Leng Y X 2020 *Laser & Optoelectronics Progress* **57** 071602 (in Chinese) [黄斯豪, 刘征征, 杜鹃, 冷雨欣 2020 *激光与光电子学进展* **57** 071602]
- [16] Zhang Q, Su R, Du W N, Liu X F, Zhao L Y, Ha S T, Xiong Q H 2017 *Small Methods* **1** Unsp 1700163
- [17] Li M L, Gao Q G, Liu P, Liao Q, Zhang H H, Yao J N, Hu W P, Wu Y S, Fu H B 2018 *Adv. Funct. Mater.* **28** 1707006
- [18] Dong H Y, Zhang C H, Liu X L, Yao J N, Zhao Y S 2020 *Chem. Soc. Rev.* **49** 951
- [19] Wang J, Da P M, Zhang Z, Luo S, Liao L M, Sun Z Y, Shen X C, Wu S W, Zheng G F, Chen Z H 2018 *Nanoscale* **10** 10371
- [20] Baranov D G, Wersall M, Cuadra J, Antosiewicz T J, Shegai T 2018 *ACS Photonics* **5** 24
- [21] De Giorgi M L, Anni M 2019 *Appl. Sci.-Basel* **9** 4591
- [22] Schlaus A P, Spencer M S, Zhu X Y 2019 *Acc. Chem. Res.* **52** 2950
- [23] Eaton S W, Fu A, Wong A B, Ning C Z, Yang P D 2016 *Nat. Rev. Mater.* **1** 16028
- [24] Sasaki F, Zhou Y, Sonoda Y, Azumi R, Mochizuki H, Van-Cao N, Yanagi H 2017 *Jpn. J. Appl. Phys.* **56** 04cl07
- [25] Shen X M, Chen M M, Shi L J, Chen F, Liu Y, Cao D W, Xu C X 2019 *Opt. Commun.* **45** Unsp 124354
- [26] Chen S T, Zhang C, Lee J, Han J, Nurmikko A 2017 *Adv. Mater.* **29** 1604781
- [27] Arash R-I 2020 *Polariton Physics* (Vol. 229) (Springer Series in Optical Sciences: Springer, Cham) pp33-64
- [28] Li B B, Zhou T J, Fang X, Zhang W L, Li X M, Guan Z Q, Li J Y, Wang L, Hark S, Zhang Z Y 2019 *J. Mater. Chem. C* **7** 4102
- [29] Chen F, Xu C X, Xu Q Y, Zhu Z, Qin F F, Manohari A G, Zhu Y Z 2017 *J. Mater. Chem. C* **5** 9238
- [30] Liu Z Z, Yang J, Du J, Hu Z P, Shi T C, Zhang Z Y, Liu Y Q, Tang X S, Leng Y X, Li R X 2018 *ACS Nano* **12** 5923
- [31] Li C, Liu Z, Shang Q Y, Zhang Q 2019 *Adv. Opt. Mater.* **7** 1900279
- [32] Yang L, Li Z Q, Liu C, Yao X R, Li H Q, Liu X X, Liu J S, Zhu P W, Liu B B, Cui T, Sun C, Bao Y J 2019 *J. Phys. Chem. Lett.* **10** 7056
- [33] Liu Z, Shang Q Y, Li C, Zhao L Y, Gao Y, Li Q, Chen J, Zhang S, Liu X F, Fu Y S, Zhang Q 2019 *Appl. Phys. Lett.* **114** 101902
- [34] Eaton S W, Lai M L, Gibson N A, Wong A B, Dou L T, Ma J, Wang LW, Leone S R, Yang P D 2016 *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.* **113** 1993
- [35] Liu P, He X X, Ren J H, Liao Q, Yao J N, Fu H B 2017 *ACS Nano* **11** 5766
- [36] Schlaus A P, Spencer M S, Miyata K, Liu F, Wang X X, Datta I, Lipson M, Pan A L, Zhu X Y 2019 *Nat. Commun.* **10** 265
- [37] Mi Y, Zhong Y G, Zhang Q, Liu X F 2019 *Adv. Opt. Mater.* **7** 1900544
- [38] Chen S T, Nurmikko A 2017 *ACS Photonics* **4** 2486
- [39] Zhang L, Yuan F, Dong H, Jiao B, Zhang W W, Hou X, Wang S F, Gong Q H, Wu Z X 2018 *ACS Appl. Mater. Interfaces* **10** 40661
- [40] Zhai W H, Tian C, Yuan K, Ge C Y, Zhao S Q, Yu H R, Li Y P, Chen W X, Ran G Z 2019 *Appl. Phys. Lett.* **114** 131107
- [41] Chen S T, Nurmikko A 2018 *Optica* **5** 1141
- [42] Huang CY, Zou C, Mao C, Corp K L, Yao YC, Lee YJ, Schlenker C W, Jen A K Y, Lin L Y 2017 *ACS Photonics* **4** 2281
- [43] Snoko D 2012 *Exciton Polariton in Microcavities* (Vol. 172) (Springer Series in Solid-State Sciences: Springer, Berlin, Heidelberg) pp307-327
- [44] Nespolo J, Carusotto I 2019 *Phys. Rev. B* **100** 035305
- [45] Su R, Ghosh S, Wang J, Liu S, Diederichs C, Liew T C H, Xiong Q H 2020 *Nat. Phys.* **16** 301
- [46] Du W N, Zhang S, Shi J, Chen J, Wu Z Y, Mi Y, Liu Z X, Li Y Z, Sui X Y, Wang R, Qiu X H, Wu T, Xiao Y F, Zhang Q, Liu X F 2018 *ACS Photonics* **5** 2051
- [47] Evans T J S, Schlaus A, Fu Y P, Zhong X J, Atallah T L, Spencer M S, Brus L E, Jin S, Zhu X Y 2018 *Adv. Opt. Mater.* **6** 1700982
- [48] Park K, Lee J W, Kim J D, Han N S, Jang D M, Jeong S, Park J, Song J K 2016 *J. Phys. Chem. Lett.* **7** 3703
- [49] Zhang S, Shang Q Y, Du W N, Shi J, Wu Z Y, Mi Y, Chen J, Liu F J, Li Y Z, Liu M, Zhang Q, Liu X F 2018 *Adv. Opt. Mater.* **6** 1701032
- [50] Wang X X, Shoaib M, Wang X, Zhang X H, He M, Luo Z Y, Zheng W H, Li H L, Yang T F, Zhu X L, Ma L B, Pan A L 2018 *ACS Nano* **12** 6170
- [51] Shang Q Y, Li C, Zhang S, Liang Y, Liu Z, Liu X F, Zhang Q 2020 *Nano Lett.* **20** 1023
- [52] Zhao Z, Zhong M Y, Zhou W C, Peng Y H, Yin Y L, Tang D S, Zou B S 2019 *J. Phys. Chem. C* **123** 25349
- [53] Du W N, Zhang S, Zhang Q, Liu X F 2019 *Adv. Mater.* **31** 1804894
- [54] Han Q, Wang J, Lu J, Sun L, Lyu F, Wang H, Chen Z, Wang Z 2020 *ACS Photonics* **7** 454
- [55] Zhang X, Shi H, Dai H, Zhang X, Sun X W, Zhang Z 2020 *ACS Appl. Mater. Interfaces* **12** 5081
- [56] Fieramosca A, Polimeno L, Ardizzone V, De Marco L, Pugliese M, Maiorano V, De Giorgi M, Dominici L, Gigli G, Gerace D, Ballarini D, Sanvitto D 2019 *Sci. Adv.* **5** eaav9967
- [57] Liang Y, Shang Q Y, Wei Q, Zhao L Y, Liu Z, Shi J, Zhong Y G, Chen J, Gao Y, Li M L, Liu X F, Xing G C, Zhang Q 2019 *Adv. Mater.* **31** 1903030
- [58] Su R, Diederichs C, Wang J, Liew T C H, Zhao J, Liu S, Xu

- W G, Chen Z, Xiong Q H 2017 *Nano Lett.* **17** 3982  
[59] Wang J, Su R, Xing J, Bao D, Diederichs C, Liu S, Liew T C H, Chen Z H, Xiong Q H 2018 *ACS Nano* **12** 8382  
[60] Zhang S, Chen J, Shi J, Fu L, Du W N, Sui X Y, Mi Y, Jia Z L, Liu F J, Shi J W, Wu X X, Tang N, Zhang Q, Liu X F 2020 *ACS Photonics* **7** 327  
[61] Tian C, Guo T, Zhao S Q, Zhai W H, Ge C Y, Ran G Z 2019 *RSC Adv.* **9** 35984

## REVIEW

**Lead halide perovskites Fabry-Pérot resonant cavity laser**Zhao Xin-Wei   Lü Jun-Peng<sup>†</sup>   Ni Zhen-Hua<sup>‡</sup>*(School of Physics, Southeast University, Nanjing 211189, China)*

(Received 10 August 2020; revised manuscript received 10 September 2020)

**Abstract**

With the advent of the post-Moore era, the demand for large-capacity and high-speed information processing has caused the application of semiconductor devices to shift from electronic integration to photonic integration. High-performance micro-nano lasers are an important part of achieving photonic integration. Varieties of semiconductor materials have promoted the rapid development of semiconductor micro-nano lasers. In recent years, with the advent of a large number of new semiconductor materials (such as two-dimensional semiconductors, lead halide perovskites, etc.), it is expected that the performances of semiconductor micro-nano lasers will be further improved. Perovskite materials have excellent optical properties such as high light absorptions, high defect tolerances, and large exciton binding energy, which them excellent candidate materials for high-gain, low-threshold semiconductor micro-nano lasers. The Fabry-Perot (F-P) resonator laser is a type of perovskite laser with extensive research, simple structure and high application value. In this paper, we take lead halide perovskite F-P resonator laser for example, and summarize its working mechanism and recent research results, by starting from two aspects of photon laser with exciton and photon weak coupling and strong coupling polariton laser. And we introduce the lasing principle and influencing factors of F-P structure lasers with perovskite materials as both gain medium and resonant cavity and F-P cavity lasers with perovskite as only gain medium in detail. Finally, the current challenges of perovskite F-P resonant lasers are summarized, and the possible prospects of its further development are also presented.

**Keywords:** perovskite, Fabry-Pérot cavity, lasing, polariton**PACS:** 42.55.-f, 42.60.-v, 42.70.-a, 71.36.+c**DOI:** 10.7498/aps.70.20201302<sup>†</sup> Corresponding author. E-mail: [phyljp@seu.edu.cn](mailto:phyljp@seu.edu.cn)<sup>‡</sup> Corresponding author. E-mail: [zhni@seu.edu.cn](mailto:zhni@seu.edu.cn)