

基于 Ag_2Se 量子点的近红外自组装激光器*

廖晨^{1)†} 姚宁¹⁾ 唐路平²⁾³⁾ 施伟华^{1)‡} 孙少凌⁴⁾ 杨浩然¹⁾

1) (南京邮电大学电子与光学工程学院、柔性电子(未来技术)学院, 南京 210023)

2) (南京林业大学机械电子工程学院, 南京 210037)

3) (东南大学 MEMS 教育部重点实验室, SEU-FEI 纳微米中心, 南京 210096)

4) (东南大学电子科学与工程学院, 教育部“信息显示与可视化”国际合作联合实验室, 南京 210096)

(2023 年 9 月 8 日收到; 2023 年 10 月 9 日收到修改稿)

铅盐量子点的最低量子态的多重简并和胶体量子点与谐振腔耦合难度大, 阻碍了近红外胶体量子点激光器的发展. 本文利用基于 Ag_2Se 量子点的自组装激光器解决了上述问题. 利用最低量子态二重简并的 Ag_2Se 量子点代替铅盐量子点来实现低阈值的近红外光增益. 使用有限元法深入分析了咖啡环微腔的模场分布和振荡机制, 结果表明光场在横截面内沿之字形路径传播振荡, 量子点与腔模式实现了强耦合. 分析了腔长与自由光谱范围和激光发射波长的关系, 基于此关系以及 Ag_2Se 量子点的增益谱特性设计了单模近红外激光器, 分析了该激光器的激光特性. 以仿真结果为指导, 实验制备了阈值低至 $158 \mu\text{J}/\text{cm}^2$, 线宽为 0.3 nm 的单模近红外激光器. 通过增加激光器腔长, 使发射波长从 1300 nm 增至 1323 nm . 此外, 由于 Ag_2Se 量子点的毒性几乎可以忽略, 所以本文推进了环境友好的近红外激光器向实用型激光器发展.

关键词: 近红外, 咖啡环微腔, 胶体量子点, 环境友好**PACS:** 42.55.Px, 78.67.Hc**DOI:** 10.7498/aps.72.20231457

1 引言

近红外激光器在光通信^[1,2]、集成光电子^[3]以及生物医学^[4,5]等领域具有广泛的应用. 受益于量子限域效应, 半导体量子点作为光增益材料展现出诸多优势, 如潜在的低激光阈值、随尺寸可调谐的发射波长和几乎温度不敏感的激光特性等^[6-10]. 近红外量子点激光器最初是通过采用 III-V 族外延量子点实现的^[11], 基于此类量子点的激光器已经达到了成熟的水平. 与外延量子点相比, 胶体量子点可获得更小的尺寸, 因而具有更强的量子限域效应^[6].

此外, 胶体量子点易于集成在多种衬底上: 平面的或弯曲的; 刚性的或柔性的; 无机的或有机的^[12].

目前, 最常见的近红外发射胶体量子点为铅盐 (PbS 和 PbSe) 量子点. 这种量子点的最低量子态具有 8 重简并特性, 意味着平均每个量子点内的激子数需超过 4 才能实现粒子数反转^[13], 且高阶多激子的俄歇复合速率远快于双激子俄歇复合^[14]. 这大大提高了铅盐量子点的光增益阈值, 限制了光增益寿命^[13,15]. 此外, 铅的固有毒性对环境 and 人类健康构成风险, 阻碍了铅盐量子点的实际应用. 需要寻找一种新型胶体量子点以实现环境友好的低阈值近红外激光. 近年来, 低毒性的 Ag_2Se 量子点

* 国家自然科学基金 (批准号: 11704200, 52001168)、南京邮电大学引进人才科研启动基金 (批准号: NY217130)、中国博士后科学基金 (批准号: 2022M710668)、中央高校基本科研业务费专项资金 (批准号: 2242020k30039) 和东南大学 MEMS 教育部重点实验室开放研究基金资助的课题.

† 通信作者. E-mail: chenliao@njupt.edu.cn

‡ 通信作者. E-mail: shiwh@njupt.edu.cn

因其在整个近红外波段连续可调的发射而受到广泛关注^[16,17]. 之前的研究实验证实了 Ag_2Se 量子点的最低量子态只有二重简并, 可以在室温下实现低阈值的近红外光增益^[18], 并且证明了 Ag_2Se 量子点的增益阈值和增益波长对温度几乎不敏感^[19]. 优异的光增益特性和几乎可忽略的毒性表明了 Ag_2Se 量子点非常适于制备环境友好的低阈值近红外激光器.

光学微腔作为微米级光学谐振腔, 因其具有高品质因子和小模式体积等优点, 在集成光电子中占据着不可替代的地位. 胶体量子点与谐振腔之间的高效耦合是实现高品质激光器的关键^[20]. 常用的垂直腔面发射激光器 (VCSELs)^[21,22]、回音壁模式激光器 (WGM)(例如微盘、微环和微球)^[23-25] 以及分布式反馈 (DFB)^[2] 激光器的制备过程涉及到高温、强酸等条件, 这些可能导致胶体量子点结构的破坏, 进而影响其光学性能. 此外, 胶体量子点表面以及游离的配体, 也会对谐振腔的质量产生不利影响. 目前常用的方法是先制备腔结构, 再通过溶液加工 (如自旋涂覆或浸渍) 将胶体量子点直接覆于其上. 这种方法存在两个主要问题: 一是量子点直接覆盖在微腔表面与腔模式耦合效率较低^[26,27]; 二是在微腔表面涂覆量子点层后会导品质因子相对于原有结构显著降低^[28]. 需要寻找一种工艺简单且与胶体量子点兼容性良好的光学微腔, 以解决上述挑战和难题.

咖啡环微腔可作为一种潜在的解决方案, 其形成原理是胶体量子点分散液在蒸发过程中受“咖啡环效应”作用, 使得量子点被驱动自组装堆积形成高密度的圆环结构, 其边界处的折射率骤变将带来很强的光反馈^[29]. 相比传统胶体量子点激光器, 咖啡环微腔的制备方式简单可控, 量子点与谐振腔耦合效率高. 此外, 咖啡环微腔能与其他器件集成、与多种基底相兼容, 在激光作用下表现出高的稳定性和抗降解性^[30]. 基于咖啡环效应的微腔激光器已用于实现有机柔性电子器件的集成, 展现出良好的发展前景^[31-33]. 结合 Ag_2Se 量子点的优异光增益特性和咖啡环微腔的独特结构有望实现低阈值、高品质和低成本的小型自组装激光器.

本文在前期研究的基础上, 对基于 Ag_2Se 量子点咖啡环微腔进行了深入研究. 基于咖啡环微腔的横截面建立仿真模型, 分析了咖啡环微腔的振荡机制; 研究了腔结构和量子点的增益特性对激光性

能 (阈值, 发射波长, 线宽) 的影响; 为实现高性能的激光器, 对激光器参数进行了优化, 最终设计并制备了激光发射波长位于近红外第二窗口的低阈值激光器.

2 实验方案

2.1 样品制备

1) Ag_2Se 量子点的制备: 本文采用溶剂热合成法制备 Ag_2Se 量子点, 所需实验材料及具体步骤参照文献^[18].

2) Ag_2Se 量子点激光器的制备: 将一小滴 (0.2 μL) 的浓度约为 2 $\mu\text{mol/L}$ 的 Ag_2Se 量子点甲苯分散液滴加到干净的石英基底上, 制作咖啡环微型激光器. 液滴的蒸发动力学受“咖啡环效应”的支配, 蒸发后将在基底上留下一个良好定义的微米尺寸的圆环.

2.2 样品表征

透射电子显微镜 (TEM) 图和高分辨率 TEM 图采用透射电子显微镜 (Tecnai G2, FEI) 测量, 加速电压为 300 kV. 用分光光度计 (UV-3600, Shimadzu) 测量吸收光谱. 荧光光谱采用荧光光谱仪 (FLS920, Edinburgh) 进行测量. 用光学显微镜 (Leica DM2500M) 对咖啡环微腔的整体结构进行表征. 用原子力显微镜 (Banker Nano Multimode-8-AM) 精确表征咖啡环微腔的横截面形貌. 使用的泵浦光源是 800 nm 的飞秒激光器 (100 fs, 1 kHz, Legend-F-1k, Coherent), 泵浦光通过汇聚透镜垂直聚焦到样品基底上 (束腰半径为 40 μm). 从基底边缘处用光学多道分析仪 (Acton Research Spectra-Pro-300i) 收集和测量咖啡环微型激光器的发射信号. 所有测量都在室温下进行.

3 微腔结构

采用溶剂热合成法制备 Ag_2Se 量子点. Ag_2Se 量子点的 TEM 图如图 1(a) 所示, 其平均粒径约为 3.2 nm. 高分辨率 TEM 图 (插图) 表明了良好的结晶性, 其晶格间距为 0.24 nm, 与斜方晶相 Ag_2Se 量子点的 (013) 晶面间距一致. 如图 1(b) 所示, Ag_2Se 量子点的第一激子吸收峰和荧光 (PL) 峰分别位于 980 nm 和 1245 nm. 量子点的 PL 峰相

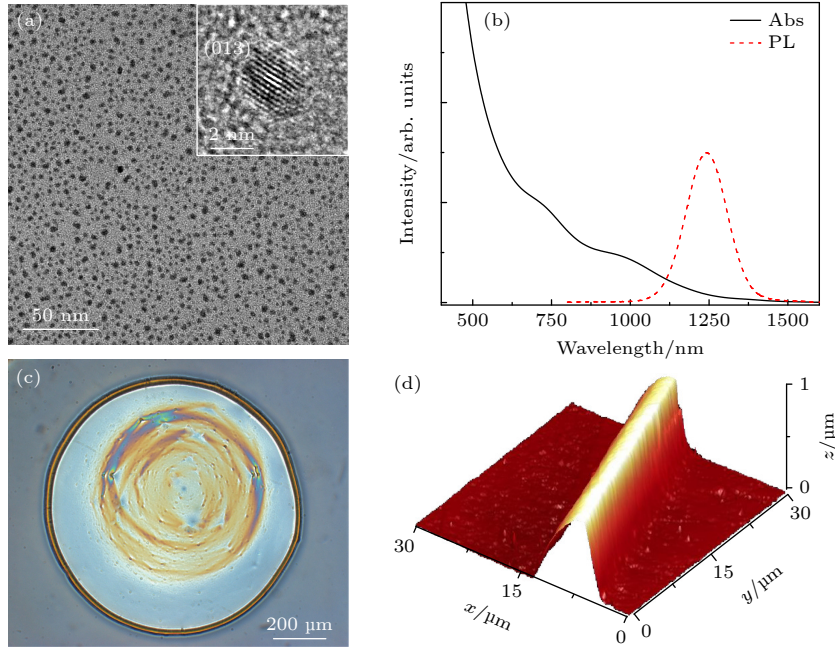


图 1 (a) Ag₂Se 量子点的 TEM 图和高分辨率 TEM 图(插图); (b) Ag₂Se 量子点在四氯乙烯中的吸收 (Abs) 光谱和荧光 (PL) 光谱; (c) Ag₂Se 量子点咖啡环的光学显微镜图; (d) 图 (c) 中咖啡环左上部分 AFM 图

Fig. 1. (a) TEM and high-resolution TEM (inset) images of Ag₂Se QDs; (b) absorption and PL spectra of Ag₂Se QDs in tetrachloroethylene; (c) optical microscope image of an Ag₂Se quantum dots coffee-ring; (d) AFM image of the top-left part of the coffee-ring shown in panel (c).

对于第一激子吸收峰表现出较大的红移 (265 nm), 有利于获得低阈值的光学增益, 这是因为发射波长处的吸收减少. 利用“咖啡环效应”制备基于 Ag₂Se 量子点的自组装微腔. 将一小滴 Ag₂Se 量子点甲苯分散液滴加在石英基底上. 在溶剂蒸发过程中, 液滴的外部接触线与基底表面钉扎, 因液滴蒸发的不均匀性, 引起了显著的毛细补偿流, 从而将 Ag₂Se 量子点输送至边缘, 并形成环形沉积物^[34]. 当积累的物质超过液面的高度时, 接触线分离, 留下了一个轮廓分明的固体环状结构^[29]. 图 1(a) 展示了沉积形成的咖啡环自组装微腔的光学显微镜图, 环直径约为 950 μm, 宽度约为 10 μm. 图 1(b) 中原子力显微镜 (AFM) 图表明, 环的形状在几十微米的长度上是均匀的, 高度几乎恒定, 约为 1 μm. AFM 的横截面图 (图 2(a) 实线) 显示了轮廓清晰的边界, 内侧斜率约为 45°, 外侧斜率约为 10°, 外边界的倾角对应于在接触线分离之前蒸发液滴与石英基底的接触角^[35]. 环的高度主要受两个因素影响, 一方面由 Ag₂Se 量子点溶液的浓度决定, 另一方面与溶液蒸发过程中接触线保持的时间有关^[36]. 甲苯溶液蒸发过程较慢, 使得接触线固定的时间更长, 进而咖啡环中积累的物质更多, 有利于形成较

高的环状物. 值得强调的是, 接触线的保持时间与基底的清洁度密切相关^[30]. 液滴在含有杂质的基底上的不均匀传播会增加液体在表面上停留的时间, 从而导致接触线破裂, 降低了物质的堆积高度, 影响整体的均匀性.

4 讨论与分析

4.1 理论分析

为研究制备的咖啡环微腔的激光特性, 对该自组装结构进行有限元法数值模拟 (使用 Comsol Multiphysics 6.1 软件). 所述自组装结构的横截面轮廓如图 2(a) 中的实线所示. 考虑到计算复杂度, 假设该截面在第 3 个空间方向上保持不变, 即通过有限的泵浦光斑尺寸引起的增益引导来实现模式限制, 将仿真从三维问题简化为二维问题. 由于泵浦光斑尺寸 (束腰半径 40 μm) 远小于环直径 (950 μm), 所以不会形成回音壁模式. 在 20 μm × 20 μm 的计算域边界上, 使用波动光学频域模块并设置散射边界条件, 以消除出射光对数值模拟结果的影响. 同时, 在咖啡环横截面轮廓边缘设置极细网格以确保仿真结果的准确性. 鉴于所述自组装结

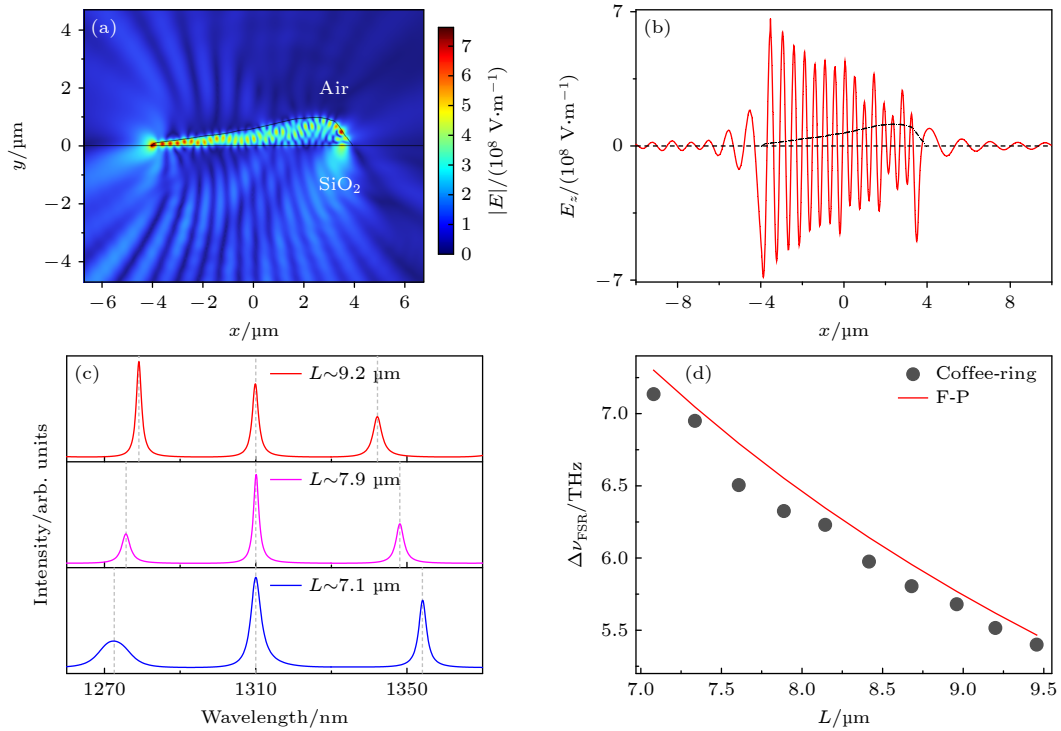


图 2 (a) 净模式增益 $g_{\text{mod}} = 0$ 时咖啡环微腔的光场分布图; (b) 微腔的驻波场分布图; (c) 腔长分别为 9.2、7.9 和 7.1 μm 的咖啡环微腔的发射谱; (d) 咖啡环微腔的 FSR 与腔长的关系 (圆点), 实线是标准 F-P 腔的 FSR

Fig. 2. (a) Optical field distribution of the coffee-ring microcavity with the net mode gain $g_{\text{mod}} = 0$; (b) standing wave field distribution in coffee-ring microcavity; (c) emission spectra with different cavity lengths of 9.2, 7.9 and 7.1 μm , respectively; (d) relationship between the FSR of the coffee-ring microcavity and the cavity length (dots). The solid line is the FSR of the standard F-P cavity.

构高的堆积密度, 我们估计微腔的折射率实部 n_r 为 2.9; 图 2(a) 所示的咖啡环横截面在 x 方向上的最大延展量约为 7.9 μm , 高度约为 1 μm . 计算域上层是空气层, 折射率为 1; 下层是石英基底, 折射率为 1.447.

首先分析咖啡环微腔的振荡方式. 为了简单起见, 此处暂将所有计算波长的净模式增益 g_{mod} 都设为 0. 图 2(a) 展示了使用内部电场激发的模场图 (TE 模), 得到该结构在 1310 nm 处的二维光场分布. 可以发现光场在横截面内外两侧反射振荡, 咖啡环即构成谐振腔又是增益介质, 模场主要分布在腔内部, 因而和量子点有高的耦合效率. 外侧边界的高度降低导致光场强度的显著增强, 在腔的尖端处有最高的电场强度^[37]. 图 2(b) 给出了沿光场传播方向的 E_z 场分布, 揭示了腔内的驻波场分布特性. 由图可知, 光场在咖啡环微腔内部的振荡方式和法布里-珀罗 (F-P) 腔相似, 在两个端面间反射振荡. 由于两者结构不同, 标准的 F-P 腔通常由两个平行反射镜组成, 而咖啡环微腔边缘具有一定倾角, 光场因量子点和空气的折射率差别被限制在腔内, 使得两者在振荡方式也存在差异. 通过计算透

过计算域边界的坡印亭矢量的通量可获得微腔的发射谱, 将腔长定义为咖啡环的横截面在 x 方向上的最大延展量, 针对可变腔长进行参数化扫描来获得不同腔长的发射谱. 图 2(c) 展示了不同腔长的微腔发射谱, 腔长为 7.1 μm , 7.9 μm 和 9.2 μm 的微腔在 1310 nm 附近的自由光谱范围 (FSR) 分别为 40.9 nm, 36.2 nm 和 31.5 nm. 随着腔长的增大, 咖啡环微腔的 FSR 减少, 这与 F-P 腔相似. 发射线宽随腔长的增大而略微减小, 是因为更大的腔拥有更强的光场限制因子. 为了进一步探究咖啡环微腔的振荡机制, 将其与标准 F-P 腔的自由光谱范围进行比较, 如图 2(d) 所示, 腔长为 7.1—9.5 μm 咖啡环微腔的 FSR 为 5.4—7.3 THz, 对应于 1310 nm 附近 31—41 nm. 根据 $\Delta\nu_{\text{FSR}} = c_0/2n_rL$, 可以计算出标准 F-P 腔的 FSR, 式中 c_0 表示真空中光速, n_r 是微腔材料的折射率实部, L 为腔长. 在相同腔长的情况下, 咖啡环微腔的 FSR 均小于 F-P 腔, 这表明咖啡环微腔的光场实际路径比横截面在 x 方向的最大延展量更长, 导致相邻模式的频率间隔更小. 这证明了微腔内部的光场传播路径为之字形, 表明在环的横向截面中提供了光反馈.

为分析 Ag_2Se 量子点的光增益特性对激光性能的影响, 引入了可变高斯型增益来模拟实验中不同的泵浦强度并精确预测咖啡环微腔的激光模式^[2]. 图 3(a) 中实线为 Ag_2Se 量子点的线性吸收谱, 通过从吸收系数中减去振幅为 g 的可变高斯型增益, 将增益引入微腔材料的复折射率中:

$$\tilde{n} = n_r + i \frac{\lambda}{4\pi} \left[\alpha_{0,\lambda} - g e^{-(\lambda-\lambda_c)^2/2\sigma^2} \right],$$

其中 \tilde{n} 为材料复折射率, n_r 为折射率实部, $\alpha_{0,\lambda}$ 为与波长相关的线性吸收系数, 光增益峰值波长 $\lambda_c = 1310 \text{ nm}$ 与 Ag_2Se 量子点薄膜的增益峰中心位置相匹配^[18], 标准差 $\sigma = 15 \text{ nm}$ 对应着约为 35 nm 的增益半高全宽. 图 3(a) 中点线的增益振幅 g 为 800 cm^{-1} , 刚好与 Ag_2Se 量子点在 1310 nm 处的线性吸收相抵消, 对应净模式增益 $g_{\text{mod},1310 \text{ nm}} = 0$. 为了实现单模发射, 咖啡环微腔的 FSR 必须大于增益半高宽. 根据上文仿真结果, 选用腔长约为 $7.9 \mu\text{m}$ 的微腔, 其截面小到足够支撑单模发射. 图 3(b) 为考虑了高斯型增益的发射谱, 当净模式增益大于 600 cm^{-1} 时, 随着增益的增大在 1310 nm 处出现了单模发射峰, 继续增大 g , 发射峰显著增

强, 并在净模式增益 $g_{\text{mod},1310 \text{ nm}} = 650 \text{ cm}^{-1}$ 时趋于饱和. 在 $g_{\text{mod},1310 \text{ nm}} = 650 \text{ cm}^{-1}$ 时线宽约为 0.1 nm , 表明咖啡环微腔具有高的质量. 之前研究中的瞬态吸收 (TA) 实验结果表明, 600 cm^{-1} 左右的净模式增益在 Ag_2Se 量子点薄膜中是可以实现的^[18]. 在激光发射的阈值之上, 随着增益的改变, 咖啡环微腔始终呈现单模发射, 证明咖啡环微腔可以支持动态单纵模输出. 这使得咖啡环微腔在光学传感、光纤通信和信息处理等方面具有优势^[38,39]. 图 3(c) 为咖啡环微腔在 $g_{\text{mod},1310 \text{ nm}} = 650 \text{ cm}^{-1}$ 的模场图, 场强相比图 2(a) 中 $g_{\text{mod}} = 0$ 的模场图有 3 个数量级的提高, 可以更清晰看到腔内光场传播振荡的之字形路径. 最高的激光发射强度源自腔的尖锐外边缘, 大部分从该边缘耦合到下面的石英基底中, 可以简单的从其侧面收集, 用于集成到光子集成电路中. 图 3(d) 展示了不同腔长的发射谱, 表明利用单一尺寸的量子点通过将微腔腔长从 $7.7 \mu\text{m}$ 增大到 $8.0 \mu\text{m}$, 可以实现发射波长从 1300 nm 增大到 1323 nm . 激光发射波长随着腔长的增大而增大的机制, 与 F-P 腔类似. 对于同一振荡模式, 当腔长变长时, 只有更长的波长才能满足驻波条件. 由于

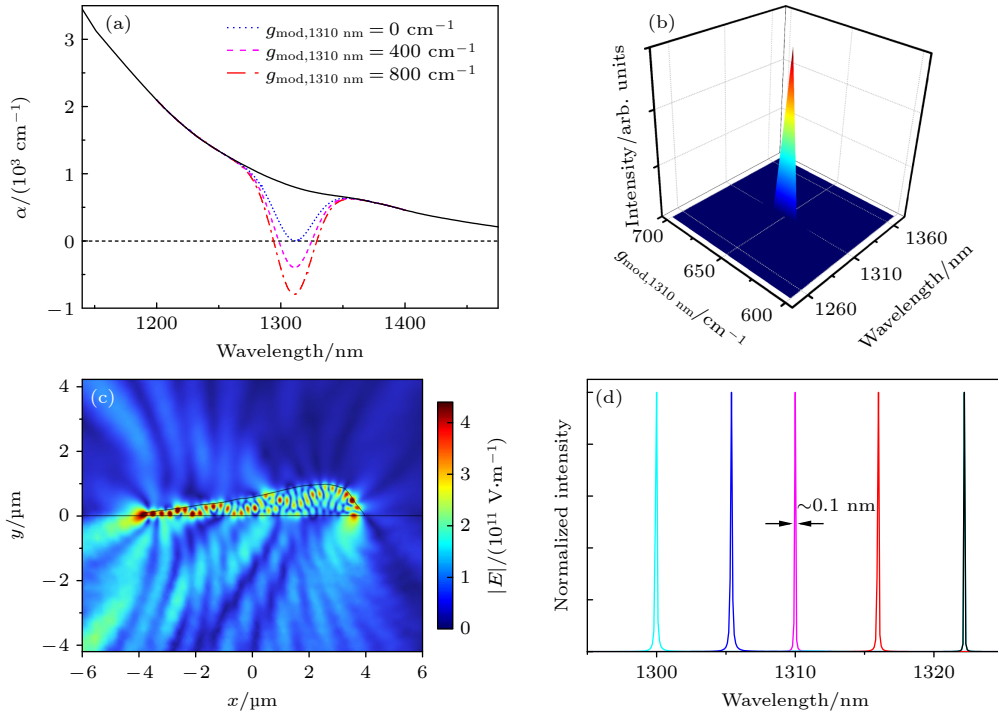


图 3 (a) Ag_2Se 量子点的线性吸收谱 (实线) 以及考虑可变高斯型增益的吸收谱; (b) 不同净模式增益的微腔发射谱; (c) $g_{\text{mod},1310 \text{ nm}} = 650 \text{ cm}^{-1}$ 的咖啡环微腔的光场分布图; (d) 不同腔长的咖啡环微腔的归一化发射谱

Fig. 3. (a) Linear absorption spectrum of Ag_2Se quantum dot (solid line) and absorption spectrum with variable Gaussian gain; (b) emission spectra of microcavity with different net mode gain; (c) light field distribution of the coffee-ring microcavity spectrum with $g_{\text{mod},1310 \text{ nm}} = 650 \text{ cm}^{-1}$; (d) normalized emission spectra with different cavity lengths.

Ag₂Se 量子点的发射谱在整个近红外波长可调, 通过改变量子点尺寸和微腔腔长, 可以制备出发射波长覆盖整个近红外第 2 窗口的量子点激光器.

4.2 实验分析

通过改变分散液的浓度获得了不同腔长的咖啡环微型激光器. 图 4(a) 为激光特性的表征光路示意图. 腔长约为 9.2 μm 咖啡环微型激光器的激光发射谱如图 4(b) 所示, 该激光器在 1310 nm 附

近的 FSR 约为 31 nm, 与仿真一致. 图 4(c) 展示了腔长约为 7.9 μm 的咖啡环微型激光器在泵浦通量低于 ($84 \mu\text{J}/\text{cm}^2$) 和高于 ($230 \mu\text{J}/\text{cm}^2$) 阈值时的激光发射谱, 该微型激光器在室温下表现出近红外 (1310 nm) 单模发射和 $158 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ 的低阈值 (图 4(c) 插图). 我们的微型激光器的激光阈值远低于发射波长相似的 PbS 量子点 DFB 激光器 ($770 \mu\text{J}/\text{cm}^2$)^[2], 也低于报道的重电子掺杂的 PbS/PbSSe 核/合金壳量子点激光器 ($160 \mu\text{J}/\text{cm}^2$)^[40],

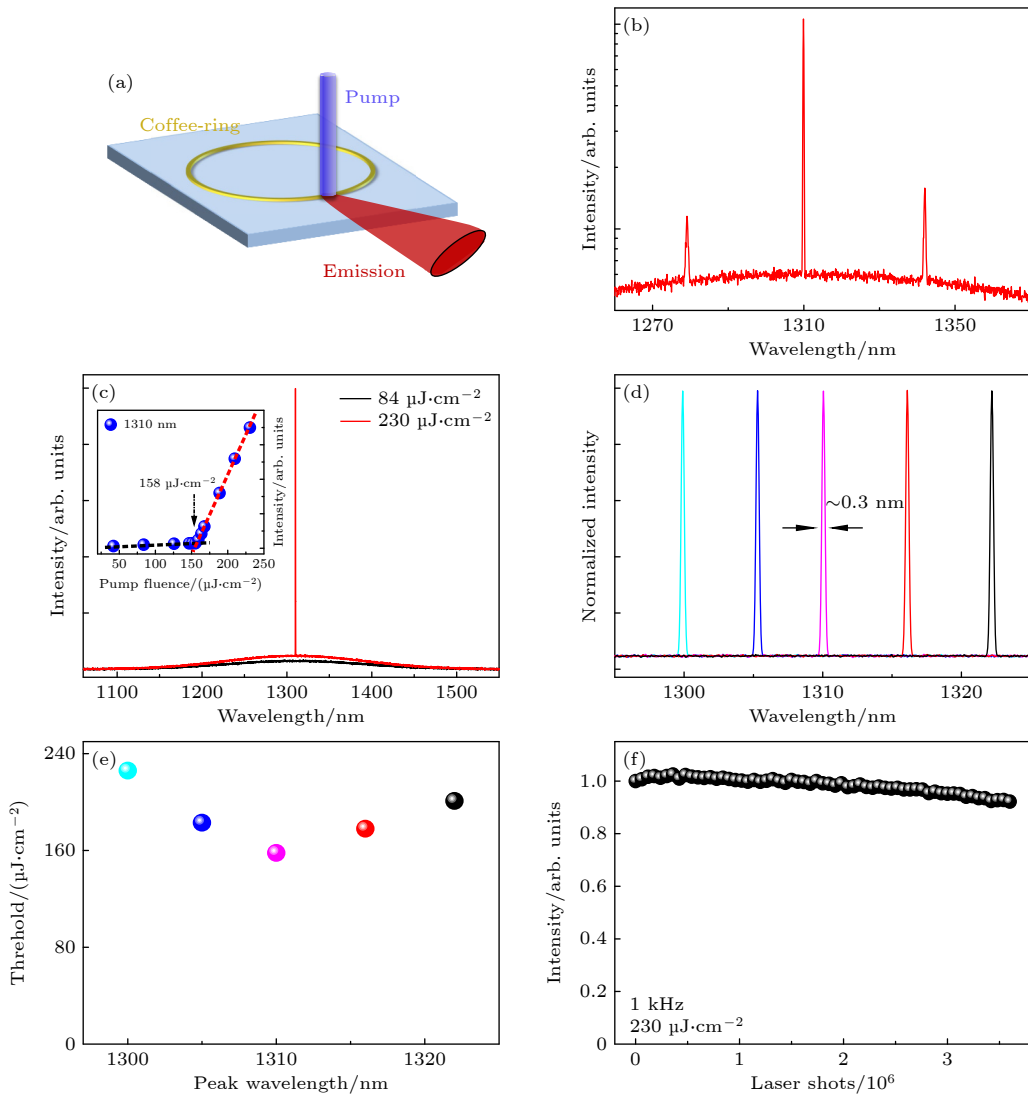


图 4 (a) 咖啡环微型激光器性能表征示意图; (b) 腔长为 9.2 μm 的咖啡环微型激光器在激光阈值以上的发射谱; (c) 腔长为 7.9 μm 的咖啡环微型激光器在不同光强泵浦下的发射谱. 插图: 激光峰处发射强度随泵浦光强的变化; (d) 不同腔长的咖啡环微型激光器的归一化激光发射谱; (e) 激光阈值 (圆点) 与峰值波长的关系; (f) 咖啡环微型激光器的激光发射峰处的发射强度随激光脉冲数的变化

Fig. 4. (a) Sketch of coffee-ring microlaser performance characterization; (b) emission spectrum of a coffee-ring microlaser with a cavity length of 9.2 μm ; (c) emission spectra of the cavity length of 7.9 μm coffee-ring microlaser with different pump fluence. The inset shows emission intensity versus pump fluence at the position of lasing peak; (d) normalized laser emission spectra of the coffee-ring microlaser with different cavity lengths; (e) lasing threshold (circles) versus peak wavelength; (f) emission intensity versus laser shots at position of laser peak observed for a coffee-ring microlaser.

据我们所知,该激光器是目前激光阈值最低的近红外胶体量子点激光器.咖啡环微型激光器的激光发射谱如图4(d)所示,通过改变激光器腔长,激光发射波长可以从1300 nm增大到1323 nm,对应于23 nm的波长范围,复现了仿真结果.激光发射峰的线宽约为0.3 nm,稍宽于仿真,这可能是由于微腔腔长在第3方向的微小变化引起的.图4(e)展示了发射峰值波长不同的微腔的激光阈值,当峰值波长为1310 nm与Ag₂Se量子点的增益峰吻合时,咖啡环微型激光器的泵浦阈值最低,为158 μJ/cm².相邻波长阈值稍有升高是由于模式增益减弱导致的.泵浦强度也可以用量子点平均激子占有率($\langle N \rangle = \sigma_{\text{abs}} j_{\text{P}}$)表示,其中 σ_{abs} 为量子点吸收截面, j_{P} 是泵浦光子通量.我们制备的Ag₂Se量子点在800 nm处的平均吸收截面估计为 2.3×10^{-15} cm²,则158 μJ/cm²对应激光阈值 $\langle N \rangle \approx 1.5$,仅略高于最低态为二重简并的量子点考虑了泊松分布的理论增益阈值($\langle N \rangle = 1.15$)^[41].咖啡环微型激光器的较低阈值可归因于以下3个因素:1) Ag₂Se量子点最低量子态的二重简并;2) Ag₂Se量子点与咖啡环微腔的高效耦合;3)“咖啡环效应”导致的高量子点堆积密度^[18,30].与之前的研究一致^[30],使用相同的沉积参数沉积的咖啡环的激光发射峰位展现出良好的一致性.如图4(f)所示,在230 μJ/cm²的泵浦下,咖啡环微型激光器在多达 3.6×10^6 个泵浦脉冲(60 min)的辐照后仍保留其初始强度的90%,表明其良好的光稳定性.在一个月后测量样品的发射特性几乎没有改变,表明咖啡环微型激光器具有杰出的抗降解性.

5 结 论

本文利用有限元分析软件COMSOL Multiphysics详细研究了咖啡环微腔的振荡方式,以及腔结构和Ag₂Se量子点的增益特性对激光性能的影响.证明了咖啡环微腔与Ag₂Se量子点存在强的光学耦合,光场在微腔横截面内沿之字形路径传播振荡.通过引入可变高斯型增益来精确预测咖啡环微腔的激光模式,设计近红外单模激光器,并分析性能.最后,参照仿真结果,实验制备了单模近红外的Ag₂Se量子点咖啡环微型激光器,通过增加激光器的腔长,使发射波长从1300 nm增加到1323 nm.线宽为0.3 nm,阈值低至158 μJ/cm²,

是目前激光阈值最低的近红外胶体量子点激光器.结果表明,本文制备的激光器具有低阈值、环境友好和制备简单等优点,在集成光子和光通信等领域具有巨大的应用潜力.

参考文献

- [1] Krauss G, Lohss S, Hanke T, Sell A, Eggert S, Huber R, Leitenstorfer A 2010 *Nat. Photonics* **4** 33
- [2] Whitworth G L, Dalmasas M, Taghipour N, Konstantatos G 2021 *Nat. Photonics* **15** 738
- [3] Cegielski P J, Giesecke A L, Neutzner S, Porschatis C, Gandini M, Schall D, Perini C A, Bolten J, Suckow S, Kataria S 2018 *Nano Lett.* **18** 6915
- [4] Vollmer F, Arnold S 2008 *Nat. Methods* **5** 591
- [5] Chen YC, Fan X 2019 *Adv. Opt. Mater.* **7** 1900377
- [6] Klimov V, Mikhailovsky A, Xu S, Malko A, Hollingsworth J, Leatherdale A C, Eisler H J, Bawendi M 2000 *Science* **290** 314
- [7] Ahn N, Livache C, Pinchetti V, Jung H, Jin H, Hahn D, Park Y S, Klimov V I 2023 *Nature* **617** 79
- [8] Fan F, Voznyy O, Sabatini R P, Bicanic K T, Adachi M M, McBride J R, Reid K R, Park Y S, Li X, Jain A, Quintero-Bermudez R, Saravanapavanantham M, Liu M, Korkusinski M, Hawrylak P, Klimov V I, Rosenthal S J, Hoogland S, Sargent E H 2017 *Nature* **544** 75
- [9] Dang C, Lee J, Breen C, Steckel J S, Coe-Sullivan S, Nurmikko A 2012 *Nat. Nanotechnol.* **7** 335
- [10] Wang Y, Yu D, Wang Z, Li X, Chen X, Nalla V, Zeng H, Sun H 2017 *Small* **13** 1701587
- [11] Ledentsov N, Ustinov V, Egorov A Y, Zhukov A, Maksimov M, Tabatadze I, Kop'ev P 1994 *Semiconductors* **28** 832
- [12] Sukhovatkin V, Musikhin S, Gorelikov I, Cauchi S, Bakueva L, Kumacheva E, Sargent E H 2005 *Opt. Lett.* **30** 171
- [13] Schaller R D, Petruska M A, Klimov V I 2003 *J. Phys. Chem. B* **107** 13765
- [14] Klimov V I, Mikhailovsky A A, McBranch D, Leatherdale C A, Bawendi M G 2000 *Science* **287** 1011
- [15] Wundke K, Auxier J, Schülzgen A, Peyghambarian N, Borrelli N 1999 *Appl. Phys. Lett.* **75** 3060
- [16] Dong B, Li C, Chen G, Zhang Y, Zhang Y, Deng M, Wang Q 2013 *Chem. Mater.* **25** 2503
- [17] Zhu C N, Jiang P, Zhang Z L, Zhu D L, Tian Z Q, Pang D W 2013 *ACS Appl. Mater. Interfaces* **5** 1186
- [18] Liao C, Tang L, Wang L, Li Y, Xu J, Jia Y 2020 *Nanoscale* **12** 21879
- [19] Liao C, Tang L, Li Y, Sun S, Wang L, Xu J, Jia Y, Gu Z 2022 *Nanoscale* **14** 10169
- [20] Chang H, Zhong Y, Dong H, Wang Z, Xie W, Pan A, Zhang L 2021 *Light: Sci. Appl.* **10** 60
- [21] Kahl M, Thomay T, Kohnle V, Beha K, Merlein J, Hagner M, Halm A, Ziegler J, Nann T, Fedutik Y, Woggon U, Artemyev M, Pérez-Willard F, Leitenstorfer A, Bratschkitsch R 2007 *Nano Lett.* **7** 2897
- [22] Yang H, Zhang L, Xiang W, Lu C, Cui Y, Zhang J 2022 *Adv. Sci.* **9** 2200395
- [23] Duan R, Zhang Z, Xiao L, Zhao X, Thung Y T, Ding L, Liu Z, Yang J, Ta V D, Sun H 2022 *Adv. Mater.* **34** 2270104
- [24] Wang Y, Leck K S, Ta D, Chen R, Nalla V, Gao Y, He T, Demir H, Sun H 2015 *Adv. Mater.* **27** 169

- [25] Zhang L, Li H, Liao C, Yang H, Ruilin X, Jiang X, Xiao M, Lu C, Cui Y, Zhang J 2018 *J. Phys. Chem. C* **122** 25059
- [26] Wang Y, Ta V D, Leck K S, Tan B H I, Wang Z, He T, Ohl C D, Demir H V, Sun H 2017 *Nano Lett.* **17** 2640
- [27] Wang G, Jiang X, Zhao M, Ma Y, Fan H, Yang Q, Tong L, Xiao M 2012 *Opt. Express* **20** 29472
- [28] Min B, Kim S, Okamoto K, Yang L, Scherer A, Atwater H, Vahala K 2006 *Appl. Phys. Lett.* **89** 191124
- [29] Di Stasio F, Grim J Q, Lesnyak V, Rastogi P, Manna L, Moreels I, Krahn R 2015 *Small* **11** 1328
- [30] Zavelani-Rossi M, Krahn R, Della Valle G, Longhi S, Franchini I, Girardo S, Scotognella F, Pisignano D, Manna L, Lanzani G, Tassone F 2012 *Laser Photonics Rev.* **6** 678
- [31] Xu Z, Zhai T, Shi X, Tong J, Wang X, Deng J 2021 *ACS Appl. Mater. Interfaces* **13** 19324
- [32] Zhang C, Zou C L, Zhao Y, Dong C H, Wei C, Wang H, Liu Y, Guo G C, Yao J, Zhao Y S 2015 *Sci. Adv.* **1** e1500257
- [33] Wong W W, Su Z, Wang N, Jagadish C, Tan H H 2021 *Nano Lett.* **21** 5681
- [34] Deegan R D, Bakajin O, Dupont T F, Huber G, Nagel S R, Witten T A 1997 *Nature* **389** 827
- [35] Zhang Y J, Ye F X, Dai J, He B F, Zang D Y 2017 *Acta Phys. Sin.* **66** 066101 (in Chinese) [张永建, 叶芳霞, 戴君, 何斌锋, 臧渡洋 2017 物理学报 **66** 066101]
- [36] Zavelani-Rossi M, Lupo M G, Krahn R, Manna L, Lanzani G 2010 *Nanoscale* **2** 931
- [37] Ma J, Xiao L, Gu J, Li H, Cheng X, He G, Jiang X, Xiao M 2019 *Photonics Res.* **7** 573
- [38] Park Y S, Roh J, Diroll B T, Schaller R D, Klimov V I 2021 *Nat. Rev. Mater.* **6** 382
- [39] Ahn N, Livache C, Pinchetti V, Klimov V I 2023 *Chem. Rev.* **123** 8251
- [40] Taghipour N, Dalmases M, Whitworth G L, Dosil M, Othonos A, Christodoulou S, Liga S M, Konstantatos G 2023 *Adv. Mater.* **35** 2207678
- [41] Kozlov O V, Park Y S, Roh J, Fedin I, Nakotte T, Klimov V I 2019 *Science* **365** 672

Near-infrared self-assembled laser based on Ag_2Se quantum dots*

Liao Chen^{1)†} Yao Ning¹⁾ Tang Lu-Ping²⁾³⁾ Shi Wei-Hua^{1)‡}
Sun Shao-Ling⁴⁾ Yang Hao-Ran¹⁾

1) (*College of Electronic and Optical Engineering & College of Flexible Electronics (Future Technology), Nanjing University of Posts and Telecommunications, Nanjing 210023, China*)

2) (*College of Mechanical and Electronic Engineering, Nanjing Forestry University, Nanjing 210037, China*)

3) (*SEU-FEI Nano-Pico Center, Key Lab of MEMS of Ministry of Education, Southeast University, Nanjing 210096, China*)

4) (*Joint International Research Laboratory of Information Display and Visualization, School of Electronic Science and Engineering, Southeast University, Nanjing 210096, China*)

(Received 8 September 2023; revised manuscript received 9 October 2023)

Abstract

The development of colloidal near-infrared quantum dot (QD) lasers has been hindered by the high state degeneracy of lead salt QDs and the difficulty in coupling colloidal QDs to the resonant cavity. In this study, we show that the above challenges can be addressed by the self-assembly laser based on Ag_2Se QDs. The Ag_2Se QDs with the lowest quantized states 2-fold degeneracy are used to replace lead salt quantum dots to achieve low threshold near-infrared optical gain. We employ the finite element method to in depth analyze the mode field distribution and oscillation mechanism of the coffee-ring microcavity. Our results reveal that the light field oscillates in a zig-zag path along the cross-sectional area, indicating strong coupling between the QDs and the cavity mode. Furthermore, we investigate the relationship of cavity length with free spectrum range and laser emission wavelength. Using this relationship and the gain spectrum characteristics of Ag_2Se QDs, we design a single-mode near-infrared laser and conduct a comprehensive analysis. The simulation results are used to fabricate a single-mode near-infrared Ag_2Se QD coffee-ring microlaser, which exhibits a linewidth of 0.3 nm and a threshold of $158 \mu\text{J}/\text{cm}^2$. Currently, it holds the record for the lowest laser threshold among near-infrared colloidal QD lasers. The increasing of the laser cavity length leads the emission wavelength to increase from 1300 nm to 1323 nm. In addition, the toxicity of Ag_2Se QD is remarkably negligible. Our work promotes the development of environment-friendly near-infrared lasers toward practical lasers.

Keywords: near-infrared, coffee-ring microcavity, colloidal quantum dots, environment-friendly

PACS: 42.55.Px, 78.67.Hc

DOI: [10.7498/aps.72.20231457](https://doi.org/10.7498/aps.72.20231457)

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11704200, 52001168), the Research Foundation of Nanjing University of Posts and Telecommunications, China (Grant No. NY217130), the Postdoctoral Science Foundation of China (Grant No. 2022M710668), the Fundamental Research Funds for the Central Universities of China (Grant No. 2242020k30039), and the Open Research Fund of Key Laboratory of MEMS of Ministry of Education, Southeast University, China.

† Corresponding author. E-mail: chenliao@njupt.edu.cn

‡ Corresponding author. E-mail: shihw@njupt.edu.cn



基于Ag₂Se量子点的近红外自组装激光器

廖晨 姚宁 唐路平 施伟华 孙少凌 杨浩然

Near-infrared self-assembled laser based on Ag₂Se quantum dots

Liao Chen Yao Ning Tang Lu-Ping Shi Wei-Hua Sun Shao-Ling Yang Hao-Ran

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 72, 224204 (2023) DOI: 10.7498/aps.72.20231457

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.72.20231457>

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

半导体自组织量子点量子发光机理与器件

Physics and devices of quantum light emission from semiconductor self-assembled quantum Dots

物理学报. 2018, 67(22): 227801 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180594>

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>

半导体上转换单光子探测技术研究进展

Research progress of semiconductor up-conversion single photon detection technology

物理学报. 2018, 67(22): 221401 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180618>

近红外光刺激神经细胞钙离子光激活

Stimulating Ca²⁺ photoactivation of nerve cells by near-infrared light

物理学报. 2020, 69(15): 158701 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200489>

基于1.06 μm波长的空间合作目标及碎片高精度激光测距试验

1.06 μm wavelength based high accuracy satellite laser ranging and space debris detection

物理学报. 2020, 69(1): 019502 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20191299>

优化双色近红外激光及其二次谐波场驱动原子产生孤立阿秒脉冲

Generation of isolated attosecond pulses from atoms driven by optimized two near-infrared pulses and their second harmonic fields

物理学报. 2022, 71(23): 233207 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20221375>