

纳米激光概述

许嘉璐^{1,2}, 宁存政^{1,2*}, 熊启华^{3,4**}

¹清华大学电子工程系, 北京 100084;

²清华大学国际纳米光电子学研究中心, 北京 100084;

³清华大学物理系低维量子物理国家重点实验室, 北京 100084;

⁴北京量子信息科学研究院, 北京 100193

摘要 自从第一个激光器诞生以来, 激光对科学研究和技术应用都有革命性的影响。激光本身作为一门科学和技术兼具的学科, 也一直是一个快速发展和极其活跃的研究前沿, 激光器的线性尺寸从极小到极大跨越达 10 个数量级。主要介绍近十几年来激光向极小尺寸(即纳米激光)发展的一些基本情况, 包括纳米激光发展的基本历史脉络和背景、各种不同的种类和特点、应用场景、目前发展状况、面临问题、未来趋势。不同种类的纳米激光器的主要区别在于激光腔和增益材料的不同, 涉及的纳米腔结构包含纳米线状腔、回音壁式腔、Fabry-Pérot 腔及金属等离子体元腔等; 涉及的增益介质包括普通的化合物半导体和新兴钙钛矿、过渡金属硫族化合物等。

关键词 光电子学; 半导体激光器; 微腔器件; 等离子体; 纳米光子学及光子晶体; 亚波长结构; 半导体

中图分类号 O436

文献标志码 A

doi: 10.3788/CJL202148.1501002

1 引言

自从激光发明以来^[1-3], 激光器的尺寸和功率同时向极大和极小方向得到了长足的发展。常见的固体激光器和气体激光器, 尺寸约在 m 量级; 而用于激光聚变的激光系统, 尺寸在几百 m 量级。在小尺寸激光方面, 半导体激光器一直是最小的激光种类之一, 它的尺寸从 60 年前的 cm、mm 量级, 缩小到了今天的亚 μm (或 nm) 尺寸, 即所谓的纳米激光。到今天为止, 激光器的线尺度从极大到极小跨越约 10 个数量级。

半导体纳米激光的出现是半导体激光发展的自然结果。半导体激光历经近 60 年, 先后经过了几次“激光腔”设计和概念上的突破, 每次突破都导致了器件性能的改进、阈值的降低、尺寸的减小、新应用场景的出现。最初的半导体激光腔由晶体解理面自然形成, 即所谓的 Fabry-Pérot (F-P) 激光腔^[4], 20 世纪 70 年代—80 年代, 具有分布式反馈机制的分布式反馈(DFB)和分布式布拉格反射(DBR)激光

的出现^[5-6], 对降低激光阈值、提高激光单色性和提高调制速度产生了决定性的影响, 奠定了半导体激光在光通信领域不可替代的地位, 为后来的网络互联时代提供了技术基础。与此同时, 摩尔定律驱动的微电子技术的不断进步, 对信息传递提出了前所未有的挑战和要求, 使得信息传递在越来越小的尺度上, 出现了由“电”到“光”过渡的美好现实和更诱人的远景。相应地出现了各种新的“光腔”的设计, 如 20 世纪 80 年代出现的基于 DBR 结构的垂直腔面发射激光(VCSEL)^[7]、90 年代出现的各种微腔概念^[8-9]、后来的光子晶体激光^[10]等。相比于过去的激光, 这些新型的微腔激光器的有源区和模式体积缩小到了前所未有的程度; 但相比于较前的激光, 这些 90 年代后出现的激光较难实现电泵浦运转, 加之如光子晶体激光整体尺寸还是很大, 这些激光还是无法满足未来芯片上激光的要求, 特别是光电同时集成的片上通信所需的高密度集成^[11]。

进入 21 世纪后, 对越来越小激光尺寸的探索导致许多新型的、更小尺寸的激光产生。这些激光的

收稿日期: 2021-04-06; 修回日期: 2021-05-18; 录用日期: 2021-07-06

基金项目: 国家自然科学基金(12020101003, 91750206, 61861136006)

通信作者: *cning@tsinghua.edu.cn; **qihua_xiong@tsinghua.edu.cn

典型特征是至少有一个维度的尺寸在亚 μm 量级,预示着纳米激光时代的真正来临。纳米激光主要分为 2 大类,基于各种新型纳米材料和纳米结构的激光,如纳米线(NW)、纳米带、纳米薄膜等^[12-16];基于金属和电介质界面的等激元模式的激光^[17-19]。本文重点介绍这 2 类纳米激光及其主要应用。除未来信息技术所需的片上互联应用,基于纳米激光集成的各种探测和传感也是纳米激光非常重要的应用领域。

2 半导体纳米线激光器

半导体纳米线由于独特的几何形状和完善的合成方法得到了广泛的关注,特别是纳米线的生长方法、可用的基底和源材料都比普通晶体薄膜外延生长更多样化,廉价且简易的基于金属催化的气-液-固(VLS)方法使得纳米线研究在过去 20 年得到突飞猛进式的发展^[12,20-23]。半导体纳米线一般是长度为 $1\sim 100\ \mu\text{m}$,直径为 $10\sim 100\ \text{nm}$ 的准一维结构^[20],包括类似方法生成的带状或薄膜状纳米结构,它们的共同特点是至少有一个维度在纳米尺度,能够相对独立于基底生长或存在。由于大折射率差,这类纳米线结构端面和空气可形成 F-P 谐振腔,为轴向导模提供有效增益介质、低损耗光波导及强光学限制^[21]。此外,相比于平面外延薄膜生长,纳米线对晶格失配的容忍度更高,生长材料的选择范围更广,为未来的光电子集成提供了非常有前景的途径。

2.1 纳米线激光器的激射波段

自 2001 年首次实现纳米线激光器以来^[12],人们已经用各种材料制成了阵列或单根纳米线激光器,包括 ZnO ^[12]、 GaN ^[24]、 InGaN ^[25]、 CdS ^[26]、 CdSe ^[14]、 CdSSe ^[27]、 GaAs ^[28]、 InP ^[29]、 InGaAs ^[30]、 GaAsSb ^[31]、 GaSb ^[13]、 PbS ^[32]等,激射波长覆盖紫外至中红外波段,能满足照明、显示、通信、探测、传感等各种应用的需求,如图 1 所示。

2001 年, Huang 等^[12]首次报道了室温下 ZnO 纳米线紫外激光器,通过在氩气氛下加热 ZnO 和石墨的混合物,纳米线“自下而上”地生长在金包覆的蓝宝石衬底上。当泵浦光超过阈值时,发射谱上出现尖峰,激射波长为 $385\ \text{nm}$,线宽小于 $0.3\ \text{nm}$ 。 GaN 材料由于禁带宽度大、原子键强、化学稳定性高等优点,常作为紫光的激光二极管材料。2003 年, Choi 等^[24]首次报道了异质结构纳米线,采用化学气相沉积的方法合成 $\text{GaN}/\text{Al}_{0.75}\text{Ga}_{0.25}\text{N}$ 核-壳纳

米线,其中自发相分离形成直径为 $5\sim 40\ \text{nm}$ 的 GaN 核。这种核-壳结构多用于表面钝化,抑制增益介质核表面的非辐射复合。进一步地, $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}/\text{GaN}$ 多量子阱核-壳结构纳米线在室温下实现激射,通过调节三元化合物 InGaN 中 In 、 Ga 组分比例,激射波长也会相应改变^[25]。以上都是紫外波段的纳米线激光器。2005 年, CdS 纳米线在蓝绿波段的激射被证实,实验表明,在 $75\ \text{K}$ 温度下激子-激子相互作用占主导,而更高温度下激子-声子作用在激射过程中起主要作用^[26]。很快(2007 年),基于 CdSe 纳米带的红光激射也被实验证实^[14]。

相比于激射波长在可见光和紫外波段的宽禁带半导体,由于存在较为严重的表面和俄歇复合等非辐射复合通道,辐射效率降低,在近红外和中红外波段的纳米线激光器的发展受到了很大限制。2006 年, Chin 等^[13]用自发形核生长技术在非晶态石英衬底上合成 GaSb 纳米线,并将其转移至蓝宝石衬底上进行光学表征,在低温下首次实现了近红外波段的激射。2011 年, Chen 等^[30]设计了 $\text{InGaAs}/\text{GaAs}$ 异质结构纳米线,该纳米线自下而上集成到 Si 上,室温下泵浦阈值约 $93\ \mu\text{J}/\text{cm}^2$ 。2013 年, Saxena 等^[28]在芯-壳-帽 $\text{GaAs}/\text{AlGaAs}/\text{GaAs}$ 结构纳米线中实现近红外波段的室温激射。2018 年, Ren 等^[31]采用 GaAsSb 基多个轴向超晶格作为增益介质的纳米线,该纳米线在室温下 $890\sim 990\ \text{nm}$ 波长范围内实现单模激射。

波长进一步扩展至中红外波段时,材料的选择范围大大缩小,并要求极高的材料质量。 PbS 材料具有电子和空穴质量相近、静态介电常数大、库伦屏蔽作用强等特性,俄歇复合速率大为降低,发光效率非常高。2020 年, Fan 等^[32]利用化学气相沉积(CVD)在硅衬底上生长高质量的 PbS 纳米线,温度为 $115\ \text{K}$ 时,在生长衬底上观测到 $3526\ \text{nm}$ 处的激射。这个结果对实现基于硅的集成光子平台上的多种中红外波段应用非常重要。

2.2 可调谐纳米线激光器

许多光子学应用,包括传感、白光光源以及光电集成电路等,都需要波长可调谐的纳米级激光器^[22]。由于纳米线对生长衬底不敏感,可在单次生长过程中在单个衬底上生长组分连续变化的多元合金纳米线,实现具有超宽波长调谐范围的空间连续可调激光器。这是平面外延薄膜生长无法做到的。

根据合金成分的温度依赖性,几种基于 CVD 的方法可以实现单个衬底纳米线组成成分空间分布

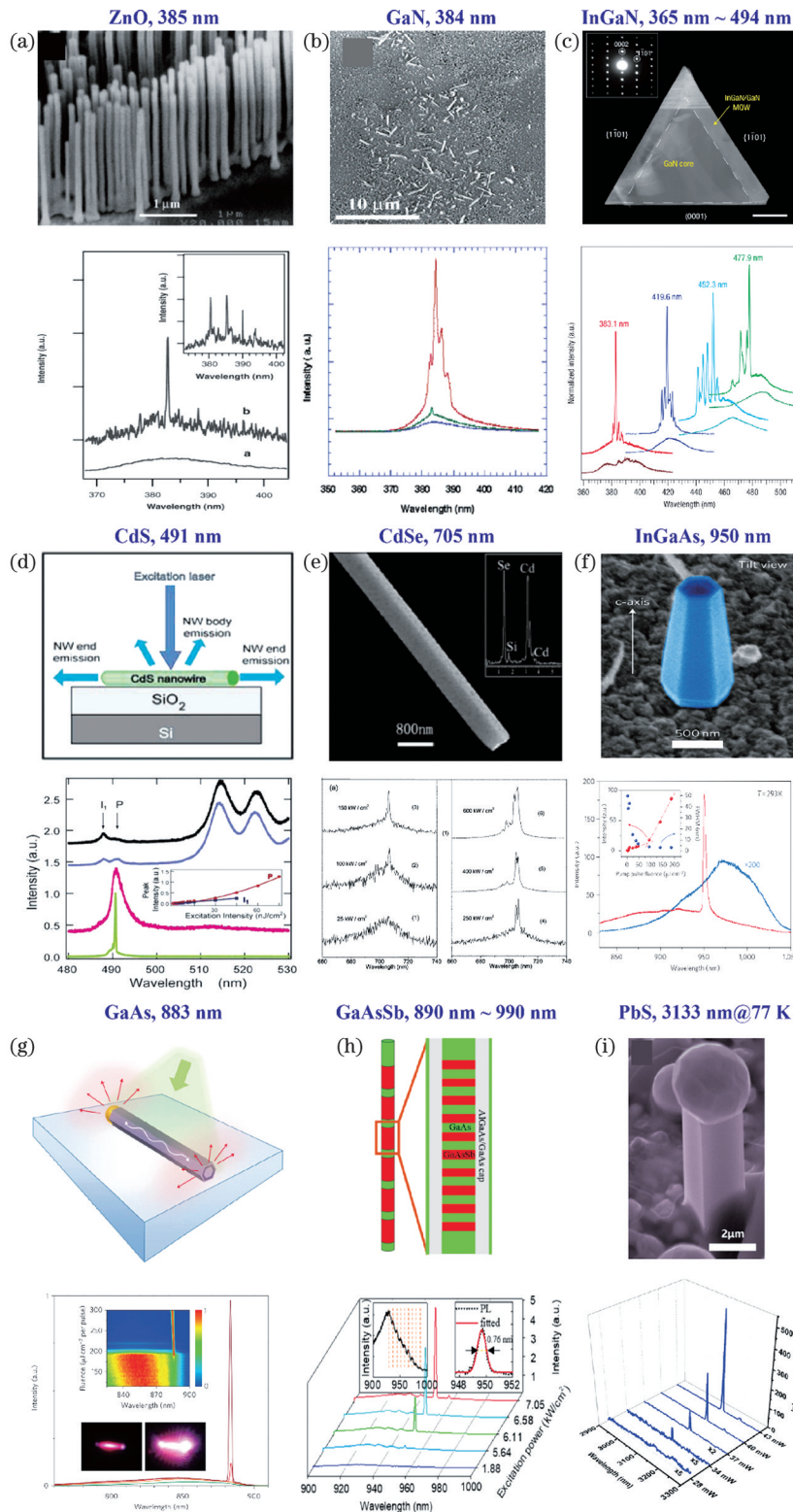


图 1 不同增益材料纳米线激光器的结构和激光光谱。(a) ZnO 纳米线^[12]；(b) GaN/Al_{0.75}Ga_{0.25}N 核-壳纳米线^[24]；(c) In_xGa_{1-x}N/GaN 多量子阱核-壳纳米线^[25]；(d) CdS 纳米线^[26]；(e) CdSe 纳米线^[14]；(f) InGaAs/GaAs 核-壳纳米线^[30]；(g) GaAs/AlGaAs/GaAs 芯-壳-帽纳米线^[28]；(h) GaAsSb 基超晶格纳米线^[31]；(i) PbS 纳米线^[32]

Fig. 1 Structures and lasing spectra of nanowire lasers with different gain materials. (a) ZnO NW^[12]；(b) GaN/Al_{0.75}Ga_{0.25}N core-shell NW^[24]；(c) In_xGa_{1-x}N/GaN multi-quantum-well core-shell NW^[25]；(d) CdS NW^[26]；(e) CdSe NW^[14]；(f) InGaAs/GaAs core-shell NW^[30]；(g) GaAs/AlGaAs/GaAs core-shell-cap NW^[28]；(h) GaAsSb based superlattice NW^[31]；(i) PbS NW^[32]

可调^[33]。第一种是源材料梯度法,使用放置在两个单独的微型管中不同轴向位置的两种源材料,由于沿轴向的温度分布,可以移动源材料的位置,确定下游垂直放置的衬底上两种源材料的相对量。2007年,Kuykendall等^[34]采用这种方法,首次报道了单晶 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ 纳米线在单个衬底上 x 在 0 到 1 的整个组成范围内的生长,显示了从近紫外到近红外波段的连续可调发光。第二种是温度梯度法,将衬底水平放置,两种源材料都放入主管中,衬底两端的温度可以控制。优化温度的分布,使衬底两端有利于两种二元化合物生长,中间位置生长合金。2009年,通过控制 CVD 系统中的局部衬底温度,在 1.2 cm 的单个衬底上生长出覆盖三元合金 CdSeS 全部组成范围的纳米线,沿衬底长度方向激光波长由 503 nm 连续可变至 692 nm,在单一衬底上首次实现了从绿到红连续波长可调,并首次实现波长近 200 nm 的可调激光^[27]。最后一种是双重梯度法,即源材料梯度法和温度梯度法的结合,可以将给定的局部组分与所需的局部温度匹配,这样可以优化合金组分,同时通过温度调节实现均匀的过饱和度,纳米线在整个衬底上保持相似的形态。利用这种方法,首次实现了单晶 $\text{Zn}_x\text{Cd}_{1-x}\text{S}_y\text{Se}_{1-y}$ 四元合金纳米线在整个带隙范围内的组分连续变化,对应整个可见光谱范围内的相应发光。实验结果表明,可以

将双重梯度法扩展到两个空间维度上实现合金组分的控制^[35]。

进一步地,在单体半导体或单个器件中实现多色或白光激光是大家追求的目标,控制源材料和相应的生长衬底温度是成功的关键,近年来取得的部分进展如图 2 所示。2012年,Fan等^[36]通过两步 CVD 在硅衬底上生长带隙不同的 CdS/CdSe 异质结构矩形纳米带,异质结的两部分在同一个纳米带上形成空间不同但相互耦合的矩形腔,从而实现了红光(613 nm)和绿光(562 nm)的同时激励。2013年,Liu等^[37]克服了多色激光在材料生长和腔设计两方面的挑战,将组分连续变化的单根 CdSeS 纳米线宽带隙的一端弯成环状,以减小吸收损耗,形成两个独立的腔体,实现双色激光发射,并在 107 nm 波长范围内连续可调。2015年,Fan等^[38]成功地生长了 ZnCdSSe 四元合金单片多段纳米带,三种带隙的材料组成单体的矩形薄膜能同时在红光、绿光和蓝光波段激励,通过动态调控泵浦光强度,首次实现了白光激光。考虑到生长条件差别大,该多段纳米片采用几个步骤合成,首先生长发红光的 CdSe 纳米带,再通过阴阳离子同时交换的方法置换为发蓝光的 ZnS 合金,随后生长绿光(CdS)和红光(CdSe)材料。白光激光的实现在照明和可见光无线通讯等领域具有重要意义。

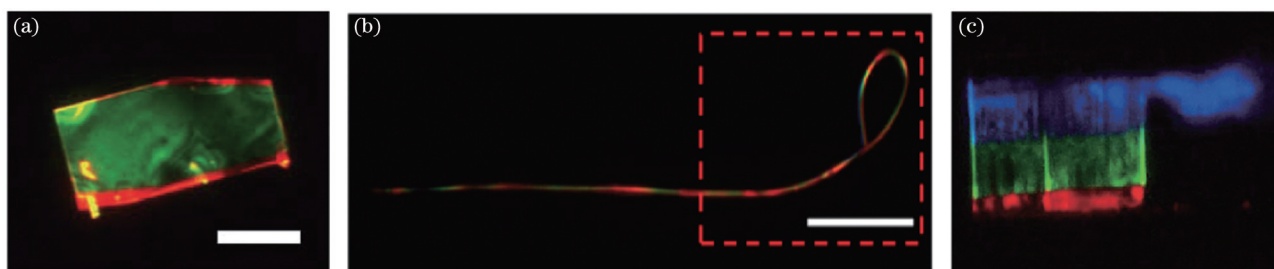


图 2 多色纳米线激光器。(a) CdS/CdSe 异质结构矩形纳米带^[36]; (b) CdSeS 纳米线^[37]; (c) ZnCdSSe 四元合金单片多段纳米带^[38]

Fig. 2 Multi-color NW lasers. (a) CdS/CdSe heterostructure rectangular nanoribbons^[36]; (b) CdSeS NW^[37]; (c) ZnCdSSe quaternary alloy monolithic multi-segment nanoribbons^[38]

尽管半导体合金是有效的波长调制手段,然而合金可能会引入杂质和缺陷,降低纳米线的发光效率。另外,利用半导体纳米线的两类本征光学性质,自吸收效应和 Burstein-Moss (BM) 效应(即常说的能带填充效应),也能在光学带边低能和高能方向分别实现一定范围的波长调制。直接带隙半导体因为电子-声子(或激子-声子)耦合作用,在光学带边的低能方向产生扩展的态密度,导致直接发生光学跃迁,如光吸收效应,表现为光学带边带尾呈现指数衰

减的 Urbach 带尾。由于纳米线的一维波导效应,光泵浦产生的非平衡态载流子沿着一维波导扩散,纳米线辐射复合跃迁经过自吸收效应,探测到的辐射发光往往向带边低能方向红移,这一效应可以产生数十 nm 的波长调制,呈现出肉眼可见显著不同的颜色,波长调制的范围大小和纳米线的长度相关。例如 Liu 等^[39]在 CdS 单晶纳米线上实现了纳米激光器超过 20 nm 的波长调制范围。因为简并掺杂或者光生载流子对导带的填充,BM 效应的存在导

致直接带隙光吸收或者辐射复合荧光发生显著的蓝移,这一效应由 Burstein^[40]和 Moss^[41]在 1954 年分别独立提出。在微纳材料体系中,BM 效应在半导体微米晶和纳米线体系中被观测到^[42-43]。BM 效应产生的蓝移(Δ_{BM})和电子浓度(n_e)成正相关, $\Delta_{\text{BM}} \propto n_e^{2/3}$ 。因此,利用材料的光吸收,通过改变光泵浦功率密度,可以有效地调节蓝移的大小。此外,利用表面等离子激元的光场可以进一步增强 BM 效应,如 Liu 等^[39]用这一方法在 CdS 纳米线上实现了 20 nm 的调制范围。利用表面等离子激元,可以进一步拓展波长调制的范围,同时可以在一定的尺寸范围之内切换光学模式和表面等离子激元激光器的激射模式,Zhang 等^[44]在 2017 年提出了这一巧妙的想法。因此,结合自吸收效应和 BM 效应,在均一成分的纳米线体系可以实现超过 40 nm 的激射波长调制,极大地丰富了对微纳激光器波长进行调制的研究手段。

2.3 纳米线激光器的阈值

降低纳米线激光器的阈值是实现低功耗、高性能的关键。由于材料属性和表征手段不同,纳米线激光器的阈值是很难直接比较的^[45]。

纳米线表面体积比大,因此具有较高的表面态密度,严重的非辐射表面复合会导致阈值升高。利用核-壳异质结构进行表面钝化可改善这一问题。核-壳异质结构最早在 2003 年由 Choi 等^[24]提出,用 AlGaIn 钝化 GaN 纳米线,阈值约 $2\sim 3 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ 。Sexena 等^[28]用 AlGaAs 钝化 GaAs 纳米线,量子效率由 1% 提升到 40%,室温下阈值低至 $207 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ 。类似的结构还有 InGaAs/GaAs^[30]、GaAs/GaAsP 异质结构纳米线^[46]等。

与均匀的增益介质相比,包含量子阱、量子点等低维结构的纳米线激光器具有阈值低、温度稳定性高和波长调谐范围宽等优势。利用 AlGaAs/GaAs 单量子阱结构,可实现低泵浦阈值($600 \text{ W}/\text{cm}^2$)室温近红外波段纳米线激光器^[47]。在 GaAs/AlGaAs 材料体系的多量子阱纳米线激光器中,Alanis 等^[48]在室温下得到了约 50% 的产率和 $43 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ 的阈值。非极性生长的 InGaN/GaN 多量子阱消除了量子限制斯塔克效应,具有更高的量子效率和光谱稳定性,透明载流子密度也更低,因此光增益远高于极性 c 面量子阱,实现了低阈值激射^[49]。基于 GaAs/InGaAs 多量子点的纳米线在室温下表现出优异的单模输出,阈值为 $48 \mu\text{J}/\text{cm}^2$,输出功率为 $0.9 \mu\text{W}$ ^[50]。以 GaAsSb 基超晶格作为增益介质^[31],室温下阈值

低至 $75 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ 。

优化纳米线的材料质量也是降低阈值的有效方法。P 型掺杂已被证明是一个可行的选择方案^[51],可提高辐射复合率,从而提高发射的量子效率。优化掺杂浓度和纳米线长度,室温下纯核 GaAs 纳米线阈值低至 $10 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ 。在 GaAs 材料中掺入氮元素也可以改善表面质量,抑制非辐射复合,即使没有表面钝化,激射温度可以持续到 150 K^[52]。生长方法和测试时的转移方式对材料质量也有较大影响。采用溶液法低温合成有机-无机金属卤化钙钛矿纳米线^[53],结构缺陷显著减少,由此得到极低的阈值 $220 \text{ nJ}/\text{cm}^2$ 。有实验证明,在常用的几种纳米线转移方法中,短时间超声和聚二甲基硅氧烷(PDMS)辅助转移可获得更为优异的性能^[54]。

腔的结构对纳米线激光器的阈值具有重要影响。折叠纳米线的一端或两端构成环形腔,由于环境的反射率远高于纳米线端面,可减小损耗,实现低阈值运转^[55]。在成分均匀的半导体纳米线中,带隙保持不变,自吸收导致能量损耗很高。沿长度方向,成分对称分布的 CdS_xSe_{1-x} 纳米线中心带隙最小,模式在纳米线中传播时几乎没有自吸收,小的传播损耗使阈值相当低^[56]。相较于一般的纳米线为 F-P 激光腔,回音壁模式(WGM)结构利用全内反射的光模式提供了更高的品质因子。Gargas 等^[57]实现了 ZnO 纳米线紫外 WGM 激光。

纳米线阵列相较于单根纳米线,更容易实现较低的阈值。Kim 等^[58]展示了在 SOI 平台上直接生长并在室温下激射的 InGaAs 纳米线阵列,优越的光场约束是通过纳米线阵列组成的一维纳米臂腔实现的,阈值可达 $16 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ 。采用选区金属有机化学气相沉积(MOCVD)方法在 GaAs 衬底上生长纳米线阵列,构成二维光子晶体激光器,该激光器在室温下单模运转,腔共振和激射波长是光刻定义的线间距和直径控制的^[59]。

将纳米线和微腔耦合,可减小反射或散射损耗。Kong 等^[60]在 DBR 上直接生长垂直排列的 ZnO 纳米线,由于 DBR 的高反射率,在泵浦功率大于 $121 \text{ kW}/\text{cm}^2$ 时,观察到 F-P 模式的受激发射。Heo 等^[61]将 GaN 纳米线阵列包覆在 DBR 反射镜中。Takiguchi 等^[62]将纳米线和 Si 光子晶体耦合,在亚波长尺寸实现了连续波激射。

2.4 电泵浦纳米线激光器

上述纳米线激光器均是光泵浦纳米线激光器,而对于通信、信息存储、照明等应用,电泵浦纳米线

激光器是十分必要的。2003 年, Duan 等^[63]将 n 型 CdS 纳米线水平放置在 p 型 Si 衬底上, 形成 n-CdS/p-Si 异质结构, 电子自沉积在纳米线上的金属层注入, 空穴自 p 型 Si 衬底注入。在高注入水平下, 较宽的自发辐射背景上出现一系列窄线宽的发光峰, 最窄线宽仅 0.3 nm, 是电泵浦纳米线激光器的首次报道。2015 年, 有工作报道了 6 K 温度下硅上电泵浦的 AlGaIn 纳米线激光器, 该纳米线在纵向上为 p-i-n 结构, 电子自 n 型 Si 衬底经 n-GaN、n-AlGaIn 注入, 空穴自 p-GaN、p-AlGaIn 注入 AlGaIn 增益介质中。随机分布的亚波长尺度 AlGaIn 纳米线阵列可以用于循环光散射, 实现强光限制, 从而降低阈值^[64]。

目前, 制作可重复的室温电泵浦纳米线激光器还需考虑许多问题, 例如多层可控的掺杂、高的金属电极质量、高效电泵浦的结构等^[20]。有仿真研究表明, 相较于纵向 p-i-n 结构纳米线, 芯-壳 p-n 结构的载流子注入水平更高, 并且对载流子的限制能力强, 生长过程简单, 由于不需要 I 型能带结构, 纳米线器件设计有更大的灵活性, 在实现电泵浦纳米线激光器方面具有很好的前景^[65]。

2.5 钙钛矿半导体纳米线激光器

以 ABX_3 为分子式的金属卤化物钙钛矿半导体材料(以下简称钙钛矿半导体, 其中 A 代表一价的铯阳离子或者甲胺阳离子, B 为二价铅阳离子, 而 X 一般为一价卤素阴离子)最近十年来, 因在太阳能电池方面的优异性能越来越受到不同研究领域的广泛关注^[66-67]。根据 A-位点所采用的不同离子, 钙钛矿半导体又常常分为全无机钙钛矿、有机-无机杂化钙钛矿和二维钙钛矿。大部分钙钛矿半导体材料展现出优良的光学增益特性, 比如良好的光吸收系数、平衡载流子扩散、易于制备和光学带边可调, 有些钙钛矿材料具有较大的激子结合能(如全无机钙钛矿半导体)和独特的量子局限效应(如二维钙钛矿体系)。因此, 钙钛矿半导体在发光二极管、微纳激光器及光电探测器件方面也越来越受到关注^[68]。钙钛矿半导体材料的自发放大辐射特性早在 2004 年已经受到关注^[69], 而 2014 年 Xing 等^[70]的研究进一步确定了钙钛矿半导体材料作为激光器增益材料的优势, 如平衡载流子扩展、带边可调等。同样在 2014 年 Zhang 等^[16]实现了第一个钙钛矿半导体微纳激光器, 利用 CVD 生长的杂化钙钛矿片状晶体, 三角或者六角形的晶体形成了优异的 WGM 微腔。2015 年, Zhu 等^[53]利用反溶剂法生长杂化钙钛矿纳米

线, 高质量的晶体和端面形成 F-P 腔, 其具有载流子寿命长和缺陷态低的特性, 在可见-近红外波段的激射品质因子突破 3000, 继续推动了钙钛矿半导体纳米线 F-P 微腔激光器的研究。Xing 等^[71]同年的工作也展示了气相合成的钙钛矿纳米线具有良好室温激射波长调控的性质。最近几年的进展主要集中在改进样品的制备方法、获得更高质量的各种钙钛矿材料、降低光泵浦的阈值等。另外, 沿着 F-P 腔波导的传播也展示了激子极化激元模式的形成和激射^[72-73]。基于金属-介质-半导体(MIS)的典型设计^[74], 钙钛矿半导体也可以用来增强激射性能或者实现表面等离子激元激光器^[75-77]。钙钛矿半导体由于较强的离子性和有机配体的成分, 一般导电性和导热性都很差。无论是对光泵浦还是未来亟待发展的电泵浦, 激射过程中的热管理都是一个具有挑战性的难题。选择合适的导热衬底是目前广泛采纳的方法, 然而恐怕还是远远不够的。当然, 钙钛矿半导体作为一种优异的光学增益介质, 根据材料、结构、形貌及尺寸, 可以有非常广泛的体系, 根据不同的材料和形貌可以方便地设计不同的微纳激光器的微腔, F-P 微腔微纳激光器只是一种典型的代表。

3 回音壁模式纳米激光

WGM 是一种声波在环形状物里以驻波形式传播的方式, 最早由英国科学家 Rayleigh^[78]在圣保罗大教堂的圆顶展示。支持 WGM 传播的腔具有非常低的损耗, 是优良的微腔。一般而言, 具有高对称性的几何形状、并能够支持波在界面形成全反射的腔体均可以构成 WGM 微腔, 比如圆盘、正多边形盘、球体、柱体或正多面体的截面等。输入(或者说泵浦)光场被 WGM 微腔限制, 在共振条件下, WGM 腔内光场功率被放大, 增益正比于 WGM 品质因子, 反比于光子寿命和共振模式频率。由于 WGM 对光场的囚禁和放大效应, WGM 微腔在低阈值微纳激光器方面极具前景。WGM 微腔对光场的完美囚禁, 仅仅在介质(如真空)的边界处呈瞬逝场的指数衰减, 因此对激射的测量一般采取探测瞬逝场(如采取光纤耦合或者棱镜)或者探测缺陷处散射的发光的方法。

2 种类型的 WGM 较早受到了关注, 第 1 类是由表面张力形成的液滴, 可以很好地支持高品质光学微腔, 品质因子可以达到 $10^8 \sim 10^9$ ^[79-80], 染料分子如罗丹明 6G 掺杂的液滴可以支持连续光泵

浦的激光器^[81]。近年来,类似的液滴腔仍然被广泛应用于胶体量子点作为增益介质的微纳激光器中^[82-83]。第 2 类是玻璃材质的微球(一般直径在数十至数百 μm),可以形成品质因子高达 10^8 的微腔^[84]。这种微球本身不是光学增益介质,需要引入发光优异的材料,如稀土离子^[85]、量子点或者染料分子^[86-87]。

随着微纳加工技术的进步,1992 年,贝尔实验室首次通过微纳激光技术,在光学波长实现半导体 WGM 微腔^[8],展示了在通讯波长工作的 InP/InGaAsP 微盘激光器。这一颇具前景的微腔设计很快被用于具有不同增益材料的激光器,如量子点微盘激光器^[88]、共聚高分子微环激光器^[9]、氧化锌六角纳米盘激光器^[57]等。氧化锌纳米线的六角形截面也会形成 WGM,实现低阈值的光泵浦激光器^[89],同时在这一体系里 WGM 还支持激子极化激元模式的激光器^[90]。由于 WGM 的高品质因子特性,低阈

值成为一个显著的优势。如 Tamboli 等^[91]实现了室温下连续光泵浦的 GaN/InGaN 微盘 WGM 的微纳激光器。最近,其他具有优异增益特性的材料进一步促进了 WGM 微纳激光器的研究,比如卤化铅为骨架的钙钛矿半导体^[16,92-93]、二维层状半导体材料^[94]、耦合表面等离激元实现亚波长的表面等离激元激光^[76]等,均展示了在微纳激光器方面的巨大前景。图 3 总结了几类 WGM 微纳激光器的典型代表。图 3(a)~(c)是 3 种有源 WGM 微腔微纳激光器,即微腔本身也是增益介质。图 3(a)为 GaN/InGaN 微盘激光器^[91];图 3(b)为氧化锌纳米线激光器,六角形截面形成高品质 WGM 微腔^[89];图 3(c)为钙钛矿半导体 WGM 微型激光器^[93]。图 3(d)~(f)是 3 种无源 WGM 微腔,即需要引入额外的光学增益材料到 WGM 微腔。图 3(d)为染料分子掺杂的液滴激光器^[95];图 3(e)为稀土离子掺杂的玻璃微球激光器^[85];图 3(f)为二硫化钨耦合的微盘激光器^[94]。

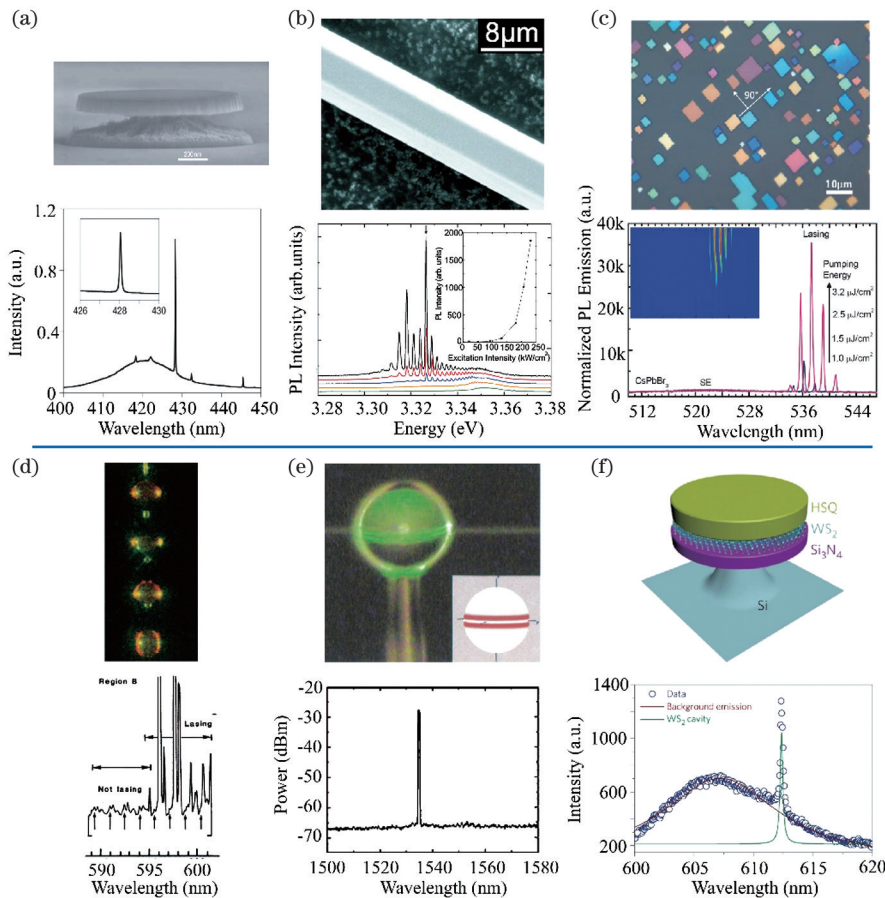


图 3 不同材料和形状的有源和无源 WGM 激光器的结构和激光光谱。(a) GaN/InGaN 微盘^[91];(b)氧化锌纳米线^[89];(c) CsPbX₃ 纳米片^[93];(d)罗丹明掺杂的乙醇液滴^[95];(e) Er³⁺ 掺杂的薄膜包覆微球,并与光纤耦合^[85];(f)单层 WS₂ 微盘^[94]
 Fig. 3 Structures and lasing spectra of active and passive WGM lasers with various materials and shapes. (a) GaN/InGaN microdisks^[91]; (b) ZnO NW^[89]; (c) CsPbX₃ nanosheets^[93]; (d) Rhodamine-doped ethanol droplets^[95]; (e) Er³⁺-doped film coated microspheres coupled with optical fibers^[85]; (f) monolayer WS₂ microdisks^[94]

4 等离子激元纳米激光

由于光在大容量信息存储、并行处理、精确计算等方面的优势,可与电子电路集成小型相干光源,引起了人们极大的兴趣。在 20 世纪 90 年代,激光器的尺寸已经可以做到波长量级,但与电子元件晶体管相比,仍大了几个数量级。此外,用于片上光互连的激光器的功耗需降至 10 fJ/bit 以下^[11],而尺寸和能耗密切相关,器件尺寸越小,功耗带宽比越低^[96]。无论是从与电子器件尺寸失配的角度,还是从降低功耗的角度,光子器件的进一步小型化都是不可避免的。1999 年,光泵浦的二维光子晶体成为当时最小的激光器^[10]。随后,准一维结构的纳米线激光器出现,其直径只有百 nm 左右^[12]。但是,这种传统的基于介质腔的光子激光器在模式体积和物理尺寸上仍受到衍射极限的限制,无法进一步缩小。目前,打破衍射极限限制的唯一手段就是等离子激元纳米激光。

等离子激元纳米激光器利用金属表面电子振荡增强光学限制。2003 年, Bergman 等^[97]首次认识到表面等离激元也可通过受激辐射放大,从而有受激辐射表面等离激元放大(spaser)的概念。2009 年,3 个团队从不同的角度、出于不同的动机分别同时在实验上验证了首个等离子激元纳米激光器或 spaser^[17-19]。等离子激元纳米激光器^[17-18]基于在金属/介质界面传播的表面等离激元模式(SPP),在传播方向上相同频率下具有比光波更大的波矢,或者能极大压缩“等效波长”,因而能实现深亚波长尺度的相干光源;而 spaser^[19]一般基于局域的表面等离子体模式(LSP),中心为金属纳米球的等离子激元核,外层为包含增益材料(如染料分子)的介质壳^[98]。从物理机理上来看,等离子激元纳米激光器与 spaser 并没有太大不同。在过去的十几年中,等离子激元纳米激光器取得了飞速发展,在光互连^[11,96,99-100]、近场光谱及传感^[101-103]、生物系统光学探测^[104-105]、近场本征模工程合成远场光束^[106-107]等应用上都有着很大的优势。

4.1 等离子激元激光的物理基础

要利用表面等离激元模式实现波长的压缩,从而打破衍射极限对激光器尺寸的限制,还需要考虑两个问题:在等离子激元纳米腔中,由于金属吸收损耗很大,能否满足模式增益大于模式损耗的激射条件? SPPs 或 LSPs 能否作为相干源的量子? 后来的研究证明,这两个问题的答案都是肯定的。由于等离子激元纳米激光器模式在空间和频域高度局域

化,还具有一些独特的性质。

在 spaser 和等离子激元纳米腔中,金属的吸收高达 10^6 cm^{-1} ,而典型半导体的材料增益在 $10^3 \sim 10^4 \text{ cm}^{-1}$ 量级^[98],等离子激元纳米腔似乎无法满足激光器的激射条件 $\Gamma_s g_s > \Gamma_m \alpha_m$,即模式增益大于模式损耗,其中 Γ_s 和 Γ_m 分别为增益介质内和金属内光限制因子, g_s 为增益介质材料增益, α_m 为金属吸收损耗。但是,由于等离子体模式传播时能速的急剧下降,模式的限制因子可远大于 1,并且在半导体-金属的交界面处,半导体区内的限制因子要比金属区高 2 个数量级^[108],使得等离子激元纳米腔可以获得净增益,从而实现激射。等离子体共振造成的能速下降证明金属不但可以增大损耗,同时也可以增强模式增益。

激光器小型化的重要动机之一是减小功率损耗^[96]。泵浦产生的光子在激光器可存在的模式中共享,模式数目越多,达到阈值所需要的泵浦速率越高。因此,可以通过减小激光器腔的体积,减少可存在的模式数目 N_m ,自发辐射产生的光子更多地耦合到激射模式中。在一阶近似条件下,各模式公平竞争激射,那么自发辐射耦合因子反比于模式数目,即 $\beta \propto N_m^{-1}$ 。在足够小的 spaser 和等离子激元纳米激光器中,自发辐射几乎全部耦合到激射模式中,即所谓的“无阈值激光器”^[109]。但是,“无阈值激光器”并不意味着不需要泵浦就能实现激射。激光器的阈值除能量输出随输入非线性增长的特性外^[110],更重要的是相干特性,特别是二阶相干性的改变^[111-112],无阈值激射实际上是不可能实现的。

由于等离子激元纳米激光器的腔体极小,模式在空间和频域高度局域化,导致腔动力学过程加快,与自由空间的自发辐射寿命 τ_0 相比,谐振腔模式处的自发辐射寿命 τ 减小^[113],可用 Purcell 因子描述, $F = \tau_0 / \tau$,从而使等离子激元纳米激光器具有超快的时间响应。若腔内存在多个模式,对第 n 个模式而言,自发辐射寿命为 τ_n ,那么 Purcell 因子是各模式 Purcell 因子的和, $F = \tau_0 \tau^{-1} = \sum_n F_n$ 。Purcell 效应对受激辐射的影响是两方面的,增益介质内的光-物质相互作用加快,包括受激辐射;模式的自发辐射因子会发生改变,对第 n 个模式而言, $\beta_n = F_n / F$,这样就改变了模式的阈值。一个较大的 β 会导致激光调制下的时间响应进一步加快^[96,114-115]。

4.2 等离子激元纳米激光器及 spaser 的发展

4.2.1 等离子激元纳米激光器的结构

自 2009 年首次实现等离子激元激光器^[17-18]和

spaser^[19]以来,基于不同的应用场景、出于不同的目的,等离子激元纳米腔的结构也愈发多样化,如图 4 所示。CdS 纳米线平放在 Ag 衬底上,中间相隔 5 nm 的 MgF₂ 透明介质层用来减小金属损耗,构成二维受限的等离子体纳米腔^[18];在半导体微盘顶部沉积金属层,构成等离子体微盘腔^[116];结合侧壁、顶部的金属及底部的分布式布拉格反射镜,形成金属腔面发射激光器^[117];增益介质夹在上下金属贴片之间,形成双片金属腔^[118];InAsP 量子阱圆盘底

部和侧壁沉积 Ag,构成等离子激元纳米圆盘腔^[76];金属-半导体共轴腔,腔中心是金属柱,外层是包覆有金属的半导体,Khajavikhan 等^[119]用这种结构实现了室温下连续光泵浦近红外波段最小的纳米激光器;将金属腔做成一维周期性结构,即 1D 等离子体晶体腔^[120-122];2D 等离子体晶体腔^[106,123];此外还有金属沟槽 F-P 腔^[124]、超材料激光器^[125]等。不断优化激光器的结构对降低功耗、减小尺寸、提高器件运转性能、实现光学互联等具有重要意义。

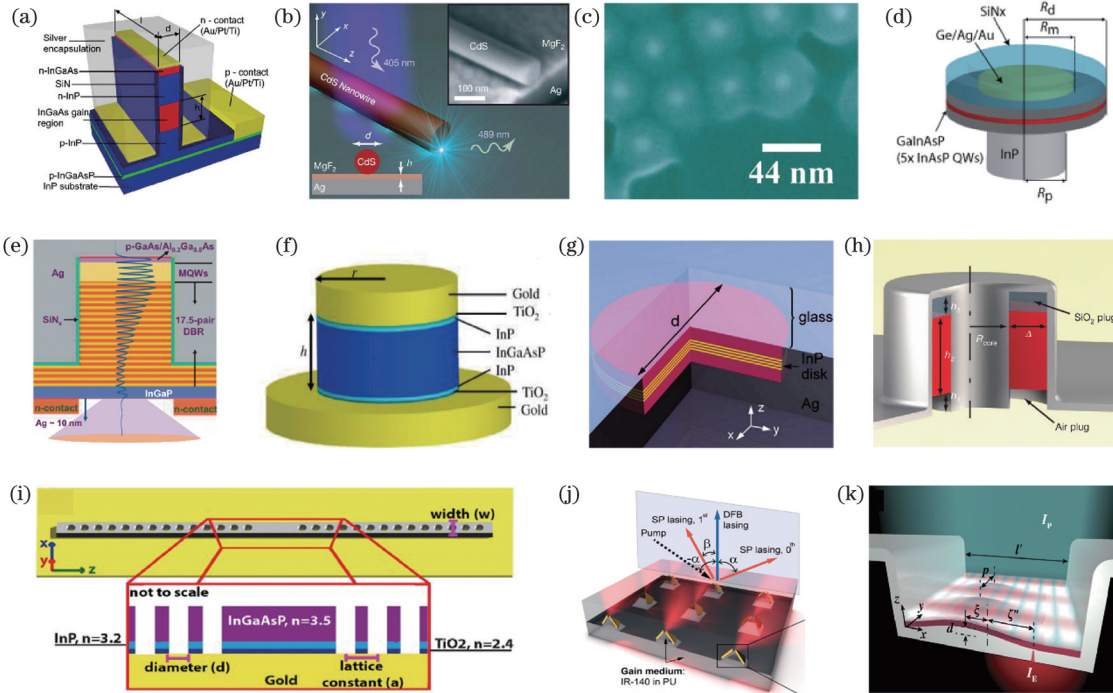


图 4 等离子激元纳米激光器的结构。(a)电泵浦金属腔纳米激光器^[17];(b)CdS 纳米线平放在 Ag 膜上^[18];(c)单粒子 spaser^[19];(d)等离子体微盘腔^[116];(e)金属腔与分布式布拉格反射镜结合^[117];(f)双片金属腔^[118];(g)金属圆盘纳米腔^[76];(h)金属-半导体共轴腔^[119];(i) 1D 等离子体晶体腔^[120];(j) 2D 等离子体晶体腔^[123];(k)金属沟槽 F-P 腔^[124]

Fig. 4 Various structures of plasmonic nanolasers. (a) Electrically pumped metal cavity nanolaser^[17]; (b) CdS NW on an Ag film^[18]; (c) single particle spaser^[19]; (d) plasmonic microdisk cavity^[116]; (e) metal cavity combined with distributed Bragg reflectors^[117]; (f) double-patch metal cavity^[118]; (g) metal pan cavity^[76]; (h) metal-semiconductor coaxial cavity^[119]; (i) 1D plasmonic crystal cavity^[120]; (j) 2D plasmonic crystal cavity^[123]; (k) metallic trench F-P nanolaser^[124]

4.2.2 等离子激元纳米激光器和 spaser 的阈值

在等离子激元纳米激光器和 spaser 中,金属带来的场限制能力伴随着欧姆损耗,严重影响激光器的性能,造成等离子激元纳米激光器的阈值一般很高。首个基于半导体材料的等离子激元纳米激光器在低温下的阈值泵浦高达 10~200 MW·cm⁻²^[18],而利用分子增益的首个室温 spaser 的阈值近 10 GW·cm⁻²^[19]。对材料和结构进行不断优化,室温下等离子激元纳米激光器的阈值可降至 1~100 MW·cm⁻²^[126-127],仍比商用半导体激光器高

2~4 个数量级。直到 2017 年,通过优化单晶 CdS 纳米方的内量子效率、优化多晶金膜使其具有光滑表面和高材料品质因数、采用全内反射降低腔体辐射损耗,最终实现室温下阈值低至 10 kW·cm⁻²,可与激光二极管相比^[128]。此外,实验数据表明,在尺寸接近或者超过衍射极限时,等离子激元激光器要比光子激光器更紧凑、阈值和功耗更低,证实激光器小型化方面具有显著的优势。

在一般的激光器中,阈值由线性坐标下输入-输出曲线上的拐点决定,即自发辐射占主导和受激辐

射占主导的分界点。对于等离子激元纳米激光器而言,腔的体积非常小,腔内可存在的模式数目少,自发辐射耦合因子 $\beta \rightarrow 1$, 导致拐点不明显甚至消失,即所谓的无阈值激光器^[111]。但是,无阈值并不意味着不需要泵浦就能实现激射,如前所述,激光同普通光源的区别并不是强度,而是相干性或者光子统计,激光的阈值由二阶相关性 $g^2(0)$ 来描述^[111-112]。对于自发辐射占主导的热光源, $2 > g^2(0) > 1$, 而对于受激辐射占主导的相干光源, $g^2(0) \rightarrow 1$ ^[112], 在阈值附近可以观察到 $g^2(0)$ 由大于 1 到 1 的转变。对于 $\beta \rightarrow 1$ 的激光器来说,这个转变过程会更为缓慢,这种现象已在等离子激元纳米激光器中观察到了^[129-132],否定了无阈值激光的可能。

4.2.3 等离子激元纳米激光器的外量子效率

在等离子激元纳米激光器中,引入金属可以显著地抑制辐射损耗,然而不可避免地带来了金属中自由载流子的吸收损耗,导致外量子效率降低,器件退化。此外,等离子激元纳米激光器外量子效率的直接表征非常困难。首先,表面等离子激元辐射是一种在金属-介质表面的局域暗辐射;其次,深亚波长纳米腔内部的光与自由空间光之间大的动量失配导致光在所有方向上衍射,收集效率低;最后,增益体积小,导致输出功率非常低。Wang 等^[133]结合实验测量和远场计算的方法表征了等离子激元纳米激光器的外量子效率。通过优化增益材料质量、减小辐射品质因子等手段将外量子效率提高到了 10% 以上。将等离子激元纳米激光器与集成波导耦合,可以进一步提高量子效率。Ma 等^[99]将 CdS 纳米带既作为激光器的增益介质,又作为输出波导,这种集成的嵌入式波导将表面等离子激元有效转化为定向激光辐射,耦合效率高达 70%,从而使辐射效率大大增加。

4.2.4 电泵浦等离子激元纳米激光器

上述各种结构的等离子激元纳米激光器均采用光泵浦方式,可以用来揭示基本物理效应,而电泵浦对实现基于半导体纳米激光器的集成光子电路是十分必要的。相较于光泵浦方式,电泵浦纳米激光器实现起来较为困难。首先,与半导体的低电阻接触通常需要钛、铂等金属,光学损耗很高,因此模式必须远离接触区域;其次,传输载流子的半导体的折射率与增益介质相近,减弱了对模式的限制;对于小尺寸结构而言,接触电阻增大,产生的焦耳热不利于纳米激光器激射^[134]。

自 2007 年低温下首次实现电泵浦金属腔纳米激光器以来,工作温度不断升高,但基本结构都是相似的^[17,100,135-138]。从横向上来看,为金属-透明介质层-半导体-透明介质层-金属(MISIM)结构,透明介质层可以减小金属损耗,阻止金属原子扩散到半导体增益区,同时起到绝缘作用。从纵向上来看,为双异质波导结构,包括重掺杂 n 型半导体的 n 电极接触、轻掺杂 n 型半导体传输电子区、中性增益介质区、轻掺杂 p 型半导体材料传输空穴区、重掺杂 p 型半导体的 p 电极接触。在这些工作中,除 2009 年在低温下纳米激光器以等离子体隙模运转^[17],其余都是介质模。

2019 年, Yang 等^[139]设计纵向结构为 Ag/MgO/ZnO/MgO/p-GaN 的电泵浦纳米激光器,电子由 Ag 直接隧穿进入 ZnO 增益介质中。2020 年, Fedyanin 等^[140]利用 Au 与高掺杂的 n 型 InAsP 薄层得到 0.2 eV 左右的肖特基势垒,电子很容易隧穿进入 InGaAs 增益介质中,类似于理想的欧姆接触。二者都利用限制金属作为电极,无需考虑钛、铂等金属过高的光学损耗,减薄了器件厚度。图 5 列举了近年来电泵浦等离子激元纳米激光器的进展及其结构。

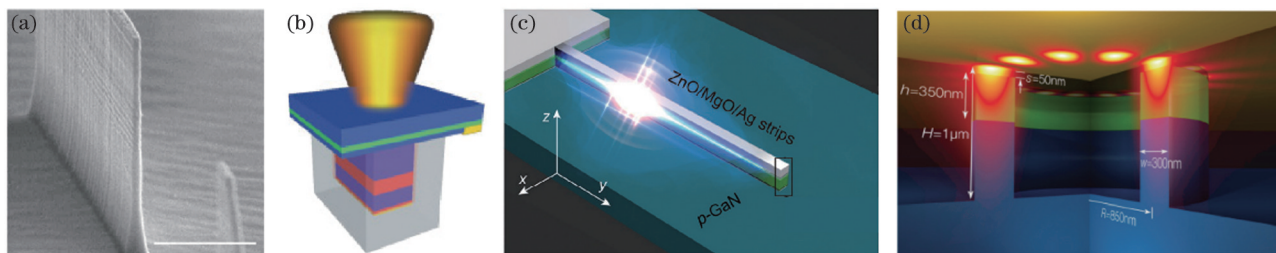


图 5 电泵浦等离子激元纳米激光器。(a)低温下第一个等离子激元隙模运转的电泵浦纳米激光器^[17];(b)室温下第一个介质模运转的电泵浦金属腔纳米激光器^[100];(c)室温下紫外波段 SPP 模式运转的电泵浦纳米激光器^[139];(d)室温下近红外波段 SPP 模式运转的电泵浦纳米激光器^[140]

Fig. 5 Electrically pumped plasmonic nanolasers. (a) First electrically pumped nanolaser operating in plasmonic gap mode at low temperature^[17]; (b) first electrically pumped metal cavity nanolaser operating in dielectric mode at room temperature^[100]; (c) ultra-violet electrically pumped nanolaser operating in SPP mode at room temperature^[139]; (d) near-infrared electrically pumped nanolaser operating in SPP mode at room temperature^[140]

4.2.5 等离子激元纳米激光器的室温运转

室温下连续运转是许多应用对纳米激光器的需求。对于等离子激元纳米激光器而言,室温下金属吸收损耗增大,等离子体加热严重,实现激射更为困难。2011 年, Ma 等^[141]首次实现了光泵浦下等离子激元纳米激光器室温激射。将 CdS 纳米方与 Ag 薄膜耦合,形成的表面等离激元携带有大动量,能在腔内实现全内反射,提供有效的腔反馈。在电泵浦条件下, Ding 等^[100]于 2012 年在深亚波长尺度的金属腔中观测到了室温激射,但该激光器工作模式为介质模。

4.2.6 等离子激元纳米激光器的直接调制

用于集成光互连的纳米激光器除了需要满足低耗、输出功率可接收、高效的激光-波导耦合、室温下连续电驱动能力等条件外,还需要较大的调制带宽,以满足 10 Gbit/s 以上的数据速率需求^[110]。2009 年,已有实验证明单个器件可以产生、发射、调制、解调飞秒等离子激元脉冲^[142]。由于等离子激元纳米激光器具有极小的模式体积、较小的 Q 值、接近于 1 的自发辐射耦合因子,受激辐射速率加快,在直接调制下具有超快的时间响应。理论研究和数值仿真证明等离子激元纳米激光器或 spaser 可具有 100 GHz 甚至 THz 的大调制带宽^[115,143-146]。在光泵浦下,实验上已观测到等离子激元激光器发射的亚 ps 脉冲^[147]。而在电泵浦下,由于等离子体金属或接触金属易形成大电容,由此 RC 时延限制了电泵浦纳米激光器的高速应用。目前 77 K 温度下,电泵浦金属-介质腔纳米激光器可响应 30 MHz 的直接电流调制^[144]。

4.2.7 单粒子 spaser 及其应用

单粒子 spaser 是目前实现的最小相干源,尺寸只有数十 nm。2009 年,首个 spaser 在可见光波段激射,其中心为直径约 14 nm 的金纳米球,外层为染料分子掺杂的二氧化硅壳,总直径只有 44 nm,增益即可克服局域的表面等离激元带来的损耗^[19]。在 spaser 中,仅通过等离子激元共振提供光反馈时,方向性很差。有数值计算,一个由金属半壳和增益介质核构成的非对称 spaser 沿半壳的轴单向发射,这种方向性与泵浦光的极化、入射角无关。此外,半壳-核结构的 spaser 的量子效率要比全壳-核结构高 1 个数量级。结果表明,破坏对称性可以作为实现单向、高强度单粒子 spaser 的途径^[148]。单粒子 spaser 的波长可调谐性也是值得关注的问题,通过改变有机染料种类和调节掺杂水平,spaser 的

激射波长可由 562 nm 调谐至 627 nm^[149]。

单粒子 spaser 具有超亮、水溶性、生物相容性、尺寸与生物分子同量级等特点,可以用作生物荧光探针,发射强度比量子点高 4100 倍,线宽窄 1/30。目前已有实验将其用于癌症的诊断和治疗。直径为 20 nm 的 spaser 表面被叶酸功能化后可用于癌细胞的分子靶向。癌细胞将 spaser 吸收,在泵浦时产生辐射,成功地用于光热和光声成像。在一个或几个泵浦脉冲之后,过热 spaser 周围的蒸汽纳米气泡聚集导致细胞膜损伤,整个癌细胞碎裂死亡^[104]。另外,spaser 的激射波长取决于形状和组分,几乎不依赖于泵浦和环境温度,因此可用于传感和探测。在利用增益增强表面等离激元传感器检测空气中爆炸物时,发现监测激光强度的变化比监测波长的变化更为有效,可达到十亿分之一以下的检测极限^[101]。2016 年,首次演示了一种激光增强表面等离激元共振(LESPR)折射率传感器,器件在室温溶液下稳定工作,由于表面等离激元激光的相干性,品质因子约为 2300。LESPR 传感器高的品质因子、接近于 0 的背景辐射和高斯型激光光谱,使得灵敏度高达 84000^[103]。为提高等离子激元纳米激光作为折射率传感器的产率和稳定性,表面钝化至关重要^[102]。

5 结语及前瞻

从作者本人的角度概述近 20 年来的纳米激光研究的主要脉络和进展。受阅历、篇幅和时间等限制,主要内容限于纳米线激光和等离子激元激光的主要特征和重要进展。由于这个领域发展极其迅猛,更多内容无法完全体现。关于这两类纳米激光,除上述已经引用的综述文章之外,还有很多其他很好的综述文章,读者可进一步参考文献[23, 150-153](纳米线激光)或文献[114, 154-161](等离子激元激光)。

从应用的角度,这两类激光都还有很多亟待解决的问题。在纳米线激光方面,首要问题还是电泵浦问题,特别是单根纳米线的电泵浦问题,是纳米线激光能否在各种应用场景发挥作用的关键,其中关键是掺杂的控制和相应的电极制作。另一重要方面是从材料研究到器件研究的真正转变,对应用上关键的各种性能特征进行系统优化和表征,如阈值、效率、调制速率等。硅基集成是纳米线激光的一个关键优势,所提很多纳米线材料和结构原则上都可以在硅基上直接生长,硅基纳米线激光器件性能的系

统研究和优化会将纳米线激光推向一个全新的高度,给很多应用带来重大影响。

等离子激光代表着物理原理和光腔设计上几十年来前所未有的创新,可能为未来激光的进一步小型化提供了难以替代的机制和选择,特别是继续小型化和高速运转的潜力都是无法替代的。但目前面临很多挑战,特别是金属损耗高的问题,急需在常见金属的制作工艺和质量上改善和突破,并开发新的等离子激光材料。与纳米线激光类似,面向应用的许多器件运转特征需要系统的研究和优化。等离子激光的另一个关键问题是器件寿命的延长。上述问题的改进有望使金属等离子激光真正成为未来片上集成激光的有力竞争者。

此外,最近一些新兴的光学增益材料的出现,为纳米激光的研究带来了新的契机。二维金属硫化物半导体和各种微纳光腔的结合,导致了极低阈值的纳米激光^[94,162-163]。但有关类似材料中增益的物理机制仍是一个未解决的基础物理问题,各种激子复合体特别是三子和激子的转换可以导致增益的出现^[164]。钙钛矿半导体和二维层状半导体在光和物质强耦合方面的进展极大推动了另一种激射模式的研究,那就是激子极化激元激光器^[165-167]。激子极化激元是微腔光子和激子耦合产生的一种准粒子,同时具有光和物质的特性,具有极低的有效质量和较强的非线性相互作用。在非线性区域,激子极化激元可以支持不需要粒子数反转的激射,因此比光学模式激射具有更低的阈值(低 1~2 个数量级)。其原理是基于激子极化激元之间和声子之间的受激散射,大量的激子极化激元同时占据动量空间面内波矢为零的能量最低点,激子极化激元的激射是伴随着激子极化激元非平衡态玻色-爱因斯坦凝聚的相干发射,具有时间和空间相干性。目前在钙钛矿^[68]和二维层状半导体微腔的进展持续推动了这个方向的发展。结合电泵浦发光二极管方面的进展^[168],这一类新型的激射模式有望在电泵浦方面取得进一步的突破。

参 考 文 献

- [1] Townes C H. The first laser[M]//Garwin L, Lincoln T. A century of nature: twenty-one discoveries that changed science and the world. Chicago: University of Chicago Press, 2003: 107-112.
- [2] Maiman T H. Stimulated optical radiation in ruby [J]. Nature, 1960, 187(4736): 493-494.
- [3] Schawlow A L, Townes C H. Infrared and optical masers[J]. Physical Review, 1958, 112(6): 1940-1949.
- [4] Hall R N, Fenner G E, Kingsley J D, et al. Coherent light emission from GaAs junctions [J]. Physical Review Letters, 1962, 9(9): 366-368.
- [5] Nakamura M, Yariv A, Yen H W, et al. Optically pumped GaAs surface laser with corrugation feedback [J]. Applied Physics Letters, 1973, 22(10): 515-516.
- [6] Reinhart F K, Logan R A, Shank C V. GaAs-Al_xGa_{1-x}As injection lasers with distributed Bragg reflectors[J]. Applied Physics Letters, 1975, 27(1): 45-48.
- [7] Jewell J L, Lee Y H, Walker S, et al. Low-threshold electrically pumped vertical-cavity surface-emitting microlasers[J]. Electronics Letters, 1989, 25(17): 1123-1124.
- [8] McCall S L, Levi A F J, Slusher R E, et al. Whispering-gallery mode microdisk lasers [J]. Applied Physics Letters, 1992, 60(3): 289-291.
- [9] Kawabe Y, Spiegelberg C, Schülzgen A, et al. Whispering-gallery-mode microring laser using a conjugated polymer [J]. Applied Physics Letters, 1998, 72(2): 141-143.
- [10] Painter O, Lee R K, Scherer A, et al. Two-dimensional photonic band-gap defect mode laser[J]. Science, 1999, 284(5421): 1819-1821.
- [11] Ning C Z. Semiconductor nanolasers and the size-energy-efficiency challenge: a review[J]. Advanced Photonics, 2019, 1(1): 014002.
- [12] Huang M H, Mao S, Feick H, et al. Room-temperature ultraviolet nanowire nanolasers [J]. Science, 2001, 292(5523): 1897-1899.
- [13] Chin A H, Vaddiraju S, Maslov A V, et al. Near-infrared semiconductor subwavelength-wire lasers [J]. Applied Physics Letters, 2006, 88(16): 163115.
- [14] Pan A L, Liu R B, Zhang Q L, et al. Fabrication and red-color lasing of individual highly uniform single-crystal CdSe nanobelts [J]. The Journal of Physical Chemistry C, 2007, 111(38): 14253-14256.
- [15] Xu J Y, Ma L, Guo P F, et al. Room-temperature dual-wavelength lasing from single-nanoribbon lateral heterostructures [J]. Journal of the American Chemical Society, 2012, 134(30): 12394-12397.
- [16] Zhang Q, Ha S T, Liu X, et al. Room-temperature near-infrared high-Q perovskite whispering-gallery planar nanolasers[J]. Nano Letters, 2014, 14(10): 5995-6001.
- [17] Hill M T, Marell M, Leong E S P, et al. Lasing in metal-insulator-metal sub-wavelength plasmonic

- waveguides[J]. *Optics Express*, 2009, 17(13): 11107-11112.
- [18] Oulton R F, Sorger V J, Zentgraf T, et al. Plasmon lasers at deep subwavelength scale [J]. *Nature*, 2009, 461(7264): 629-632.
- [19] Noginov M A, Zhu G, Belgrave A M, et al. Demonstration of a spaser-based nanolaser [J]. *Nature*, 2009, 460(7259): 1110-1112.
- [20] Ning C Z. Semiconductor nanolasers [J]. *Physica Status Solidi (b)*, 2010, 247(4): 774-788.
- [21] Maslov A V, Ning C Z. Reflection of guided modes in a semiconductor nanowire laser [J]. *Applied Physics Letters*, 2003, 83(6): 1237-1239.
- [22] Eaton S W, Fu A, Wong A B, et al. Semiconductor nanowire lasers [J]. *Nature Reviews Materials*, 2016, 1(6): 1-11.
- [23] Ma Y G, Guo X, Wu X Q, et al. Semiconductor nanowire lasers [J]. *Advances in Optics and Photonics*, 2013, 5(3): 216-273.
- [24] Choi H J, Johnson J C, He R R, et al. Self-organized GaN quantum wire UV lasers [J]. *The Journal of Physical Chemistry B*, 2003, 107(34): 8721-8725.
- [25] Qian F, Li Y, Gradecak S, et al. Multi-quantum-well nanowire heterostructures for wavelength-controlled lasers[J]. *Nature Materials*, 2008, 7(9): 701-706.
- [26] Agarwal R, Barrelet C J, Lieber C M. Lasing in single cadmium sulfide nanowire optical cavities[J]. *Nano Letters*, 2005, 5(5): 917-920.
- [27] Pan A L, Zhou W C, Leong E S P, et al. Continuous alloy-composition spatial grading and superbroad wavelength-tunable nanowire lasers on a single chip [J]. *Nano Letters*, 2009, 9(2): 784-788.
- [28] Saxena D, Mokkalapati S, Parkinson P, et al. Optically pumped room-temperature GaAs nanowire lasers[J]. *Nature Photonics*, 2013, 7(12): 963-968.
- [29] Gao Q, Saxena D, Wang F, et al. Selective-area epitaxy of pure wurtzite InP nanowires: high quantum efficiency and room-temperature lasing[J]. *Nano Letters*, 2014, 14(9): 5206-5211.
- [30] Chen R, Tran T T D, Ng K W, et al. Nanolasers grown on silicon[J]. *Nature Photonics*, 2011, 5(3): 170-175.
- [31] Ren D D, Ahtapodov L, Nilsen J S, et al. Single-mode near-infrared lasing in a GaAsSb-based nanowire superlattice at room temperature[J]. *Nano Letters*, 2018, 18(4): 2304-2310.
- [32] Fan F, Liu Z C, Sun M H, et al. Mid-infrared lasing in lead sulfide subwavelength wires on silicon [J]. *Nano Letters*, 2020, 20(1): 470-477.
- [33] Ning C Z, Dou L T, Yang P D. Bandgap engineering in semiconductor alloy nanomaterials with widely tunable compositions[J]. *Nature Reviews Materials*, 2017, 2: 17070.
- [34] Kuykendall T, Ulrich P, Aloni S, et al. Complete composition tunability of InGaN nanowires using a combinatorial approach[J]. *Nature Materials*, 2007, 6(12): 951-956.
- [35] Pan A L, Liu R B, Sun M H, et al. Spatial composition grading of quaternary ZnCdSSe alloy nanowires with tunable light emission between 350 and 710 nm on a single substrate [J]. *ACS Nano*, 2010, 4(2): 671-680.
- [36] Fan F, Liu Z C, Yin L J, et al. Simultaneous green and red lasing in a single CdSSe heterostructure nanosheet at room temperature [C] // ISLC 2012 International Semiconductor Laser Conference, October 7-10, 2012, San Diego, CA, USA. New York: IEEE Press, 2012: 72-73.
- [37] Liu Z C, Yin L J, Ning H, et al. Dynamical color-controllable lasing with extremely wide tuning range from red to green in a single alloy nanowire using nanoscale manipulation[J]. *Nano Letters*, 2013, 13(10): 4945-4950.
- [38] Fan F, Turkdogan S, Liu Z C, et al. A monolithic white laser [J]. *Nature Nanotechnology*, 2015, 10(9): 796-803.
- [39] Liu X F, Zhang Q, Xiong Q H, et al. Tailoring the lasing modes in semiconductor nanowire cavities using intrinsic self-absorption[J]. *Nano Letters*, 2013, 13(3): 1080-1085.
- [40] Burstein E. Anomalous optical absorption limit in InSb[J]. *Physical Review*, 1954, 93(3): 632-633.
- [41] Moss T S. The interpretation of the properties of indium antimonide [J]. *Proceedings of the Physical Society. Section B*, 1954, 67(10): 775-782.
- [42] Banyai L, Koch S W. Absorption blue shift in laser-excited semiconductor microspheres [J]. *Physical Review Letters*, 1986, 57(21): 2722-2724.
- [43] Yang Y H, Chen X Y, Feng Y, et al. Physical mechanism of blue-shift of UV luminescence of a single pencil-like ZnO nanowire [J]. *Nano Letters*, 2007, 7(12): 3879-3883.
- [44] Zhang Q, Shang Q Y, Shi J, et al. Wavelength tunable plasmonic lasers based on intrinsic self-absorption of gain material [J]. *ACS Photonics*, 2017, 4(11): 2789-2796.
- [45] Zhang Y Y, Saxena D, Aagesen M, et al. Toward electrically driven semiconductor nanowire lasers[J]. *Nanotechnology*, 2019, 30(19): 192002.
- [46] Hua B, Motohisa J, Kobayashi Y, et al. Single

- GaAs/GaAsP coaxial core-shell nanowire lasers [J]. *Nano Letters*, 2009, 9(1): 112-116.
- [47] Yan X, Wei W, Tang F L, et al. Low-threshold room-temperature AlGaAs/GaAs nanowire/single-quantum-well heterostructure laser [J]. *Applied Physics Letters*, 2017, 110(6): 061104.
- [48] Alanis J A, Saxena D, Mokkapati S, et al. Large-scale statistics for threshold optimization of optically pumped nanowire lasers [J]. *Nano Letters*, 2017, 17(8): 4860-4865.
- [49] Li C Y, Wright J B, Liu S, et al. Nonpolar InGaN/GaN core-shell single nanowire lasers [J]. *Nano Letters*, 2017, 17(2): 1049-1055.
- [50] Zhang X, Yi R, Gagrani N, et al. Ultralow threshold, single-mode InGaAs/GaAs multi-quantum disk nanowire lasers [J]. *ACS Nano*, 2021, 15(5): 9126-9133.
- [51] Alanis J A, Lysevych M, Burgess T, et al. Optical study of p-doping in GaAs nanowires for low-threshold and high-yield lasing [J]. *Nano Letters*, 2019, 19(1): 362-368.
- [52] Chen S, Jansson M, Stehr J E, et al. Dilute nitride nanowire lasers based on a GaAs/GaNAs core/shell structure [J]. *Nano Letters*, 2017, 17(3): 1775-1781.
- [53] Zhu H M, Fu Y P, Meng F, et al. Lead halide perovskite nanowire lasers with low lasing thresholds and high quality factors [J]. *Nature Materials*, 2015, 14(6): 636-642.
- [54] Alanis J A, Chen Q, Lysevych M, et al. Threshold reduction and yield improvement of semiconductor nanowire lasers: via processing-related end-facet optimization [J]. *Nanoscale Advances*, 2019, 1(11): 4393-4397.
- [55] Xiao Y, Meng C, Wang P, et al. Single-nanowire single-mode laser [J]. *Nano Letters*, 2011, 11(3): 1122-1126.
- [56] Guo P F, Zhuang X J, Xu J Y, et al. Low-threshold nanowire laser based on composition-symmetric semiconductor nanowires [J]. *Nano Letters*, 2013, 13(3): 1251-1256.
- [57] Gargas D J, Moore M C, Ni A, et al. Whispering gallery mode lasing from zinc oxide hexagonal nanodisks [J]. *ACS Nano*, 2010, 4(6): 3270-3276.
- [58] Kim H, Lee W J, Farrell A C, et al. Monolithic InGaAs nanowire array lasers on silicon-on-insulator operating at room temperature [J]. *Nano Letters*, 2017, 17(6): 3465-3470.
- [59] Sco A C, Kim S, Shapiro J N, et al. Bottom-up photonic crystal lasers [J]. *Nano Letters*, 2011, 11: 5387-5390.
- [60] Kong J Y, Chu S, Huang J, et al. Use of distributed Bragg reflectors to enhance Fabry-Pérot lasing in vertically aligned ZnO nanowires [J]. *Applied Physics A*, 2013, 110(1): 23-28.
- [61] Heo J, Jahangir S, Xiao B, et al. Room-temperature polariton lasing from GaN nanowire array clad by dielectric microcavity [J]. *Nano Letters*, 2013, 13(6): 2376-2380.
- [62] Takiguchi M, Yokoo A, Nozaki K, et al. Continuous-wave operation and 10-Gb/s direct modulation of InAsP/InP sub-wavelength nanowire laser on silicon photonic crystal [J]. *APL Photonics*, 2017, 2(4): 046106.
- [63] Duan X F, Huang Y, Agarwal R, et al. Single-nanowire electrically driven lasers [J]. *Nature*, 2003, 421(6920): 241-245.
- [64] Li K H, Liu X, Zhao S, et al. Ultralow threshold electrically injected AlGaN nanowire ultraviolet lasers on Si [J]. *Proceedings of SPIE*, 2015, 9363: 93631D.
- [65] Li D, Ning C Z. Electrical injection in longitudinal and coaxial heterostructure nanowires: a comparative study through a three-dimensional simulation [J]. *Nano Letters*, 2008, 8(12): 4234-4237.
- [66] Liu M Z, Johnston M B, Snaith H J. Efficient planar heterojunction perovskite solar cells by vapour deposition [J]. *Nature*, 2013, 501(7467): 395-398.
- [67] Kojima A, Teshima K, Shirai Y, et al. Organometal halide perovskites as visible-light sensitizers for photovoltaic cells [J]. *Journal of the American Chemical Society*, 2009, 131(17): 6050-6051.
- [68] Zhang Q, Shang Q Y, Su R, et al. Halide perovskite semiconductor lasers: materials, cavity design, and low threshold [J]. *Nano Letters*, 2021, 21(5): 1903-1914.
- [69] Kondo S, Suzuki K, Saito T, et al. Photoluminescence and stimulated emission from microcrystalline CsPbCl₃ films prepared by amorphous-to-crystalline transformation [J]. *Physical Review B*, 2004, 70: 205322.
- [70] Xing G C, Mathews N, Lim S S, et al. Low-temperature solution-processed wavelength-tunable perovskites for lasing [J]. *Nature Materials*, 2014, 13(5): 476-480.
- [71] Xing J, Liu X F, Zhang Q, et al. Vapor phase synthesis of organometal halide perovskite nanowires for tunable room-temperature nanolasers [J]. *Nano Letters*, 2015, 15(7): 4571-4577.
- [72] Evans T J S, Schlaus A, Fu Y P, et al. Continuous-wave lasing in cesium lead bromide perovskite nanowires [J]. *Advanced Optical Materials*, 2018, 6:

- 1700982.
- [73] Shang Q Y, Li M L, Zhao L Y, et al. Role of the exciton-polariton in a continuous-wave optically pumped CsPbBr₃ perovskite laser[J]. *Nano Letters*, 2020, 20(9): 6636-6643.
- [74] Li G Y, Liu X F, Wang X Z, et al. Purified plasmonic lasing with strong polarization selectivity by reflection[J]. *Optics Express*, 2015, 23(12): 15657-15669.
- [75] Wu Z Y, Chen J, Mi Y, et al. All-inorganic CsPbBr₃ nanowire based plasmonic lasers [J]. *Advanced Optical Materials*, 2018, 6(22): 1800674.
- [76] Kwon S H, Kang J H, Seassal C, et al. Subwavelength plasmonic lasing from a semiconductor nanodisk with silver nanopan cavity [J]. *Nano Letters*, 2010, 10(9): 3679-3683.
- [77] Tiguntseva E, Koshelev K, Furasova A, et al. Room-temperature lasing from Mie-resonant nonplasmonic nanoparticles[J]. *ACS Nano*, 2020, 14(7): 8149-8156.
- [78] Rayleigh L. The problem of the whispering gallery [J]. *The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science*, 1910, 20(120): 1001-1004.
- [79] Ashkin A, Dziedzic J M. Observation of resonances in the radiation pressure on dielectric spheres [J]. *Physical Review Letters*, 1977, 38(23): 1351-1354.
- [80] Lin H B, Campillo A J. CW nonlinear optics in droplet microcavities displaying enhanced gain [J]. *Physical Review Letters*, 1994, 73(18): 2440-2443.
- [81] Tzeng H M, Wall K F, Long M B, et al. Laser emission from individual droplets at wavelengths corresponding to morphology-dependent resonances [J]. *Optics Letters*, 1984, 9(11): 499-501.
- [82] Schäfer J, Mondia J P, Sharma R, et al. Quantum dot microdrop laser[J]. *Nano Letters*, 2008, 8(6): 1709-1712.
- [83] Wang Y, Ta V D, Leck K S, et al. Robust whispering-gallery-mode microbubble lasers from colloidal quantum dots[J]. *Nano Letters*, 2017, 17(4): 2640-2646.
- [84] Braginsky V B, Gorodetsky M L, Ilchenko V S. Quality-factor and nonlinear properties of optical whispering-gallery modes [J]. *Physics Letters A*, 1989, 137(7/8): 393-397.
- [85] Yang L, Vahala K J. Gain functionalization of silica microresonators[J]. *Optics Letters*, 2003, 28(8): 592-594.
- [86] Snee P T, Chan Y, Nocera D G, et al. Whispering-gallery-mode lasing from a semiconductor nanocrystal/microsphere resonator composite [J]. *Advanced Materials*, 2005, 17(9): 1131-1136.
- [87] Lacey S, White I M, Sun Y Z, et al. Versatile optofluidic ring resonator lasers with ultra-low threshold [J]. *Optics Express*, 2007, 15(23): 15523-15530.
- [88] Cao H, Xu J Y, Xiang W H, et al. Optically pumped InAs quantum dot microdisk lasers [J]. *Applied Physics Letters*, 2000, 76(24): 3519-3521.
- [89] Czekalla C, Sturm C, Schmidt-Grund R, et al. Whispering gallery mode lasing in zinc oxide microwires[J]. *Applied Physics Letters*, 2008, 92(24): 241102.
- [90] Sun L X, Chen Z H, Ren Q J, et al. Direct observation of whispering gallery mode polaritons and their dispersion in a ZnO tapered microcavity [J]. *Physical Review Letters*, 2008, 100(15): 156403.
- [91] Tamboli A C, Haberer E D, Sharma R, et al. Room-temperature continuous-wave lasing in GaN/InGaN microdisks [J]. *Nature Photonics*, 2007, 1(1): 61-64.
- [92] Liu X F, Ha S T, Zhang Q, et al. Whispering gallery mode lasing from hexagonal shaped layered lead iodide crystals [J]. *ACS Nano*, 2015, 9(1): 687-695.
- [93] Zhang Q, Su R, Liu X F, et al. High-quality whispering-gallery-mode lasing from cesium lead halide perovskite nanoplatelets [J]. *Advanced Functional Materials*, 2016, 26(34): 6238-6245.
- [94] Ye Y, Wong Z J, Lu X F, et al. Monolayer excitonic laser[J]. *Nature Photonics*, 2015, 9(11): 733-737.
- [95] Qian S X, Snow J B, Tzeng H M, et al. Lasing droplets: highlighting the liquid-air interface by laser emission[J]. *Science*, 1986, 231(4737): 486-488.
- [96] Ding K, Diaz J O, Bimberg D, et al. Modulation bandwidth and energy efficiency of metallic cavity semiconductor nanolasers with inclusion of noise effects [J]. *Laser & Photonics Reviews*, 2015, 9(5): 488-497.
- [97] Bergman D J, Stockman M I. Surface plasmon amplification by stimulated emission of radiation: quantum generation of coherent surface plasmons in nanosystems[J]. *Physical Review Letters*, 2003, 90(2): 027402.
- [98] Azzam S I, Kildishev A V, Ma R M, et al. Ten years of spasers and plasmonic nanolasers [J]. *Light, Science & Applications*, 2020, 9: 90.
- [99] Ma R M, Yin X B, Oulton R F, et al. Multiplexed and electrically modulated plasmon laser circuit[J]. *Nano Letters*, 2012, 12(10): 5396-5402.
- [100] Ding K, Liu Z C, Yin L J, et al. Room-temperature continuous wave lasing in deep-subwavelength

- metallic cavities under electrical injection [J]. *Physical Review B*, 2012, 85(4): 041301.
- [101] Ma R M, Ota S, Li Y M, et al. Explosives detection in a lasing plasmon nanocavity[J]. *Nature Nanotechnology*, 2014, 9(8): 600-604.
- [102] Wang S, Li B, Wang X Y, et al. High-yield plasmonic nanolasers with superior stability for sensing in aqueous solution [J]. *ACS Photonics*, 2017, 4(6): 1355-1360.
- [103] Wang X Y, Wang Y L, Wang S, et al. Lasing enhanced surface plasmon resonance sensing [J]. *Nanophotonics*, 2017, 6(2): 472-478.
- [104] Galanzha E I, Weingold R, Nedosekin D A, et al. Spaser as a biological probe [J]. *Nature Communications*, 2017, 8: 15528.
- [105] Fan X D, Yun S H. The potential of optofluidic biolasers[J]. *Nature Methods*, 2014, 11(2): 141-147.
- [106] Zhang C, Lu Y H, Ni Y, et al. Plasmonic lasing of nanocavity embedding in metallic nanoantenna array [J]. *Nano Letters*, 2015, 15(2): 1382-1387.
- [107] van Beijnum F, van Veldhoven P J, Geluk E J, et al. Surface plasmon lasing observed in metal hole arrays [J]. *Physical Review Letters*, 2013, 110(20): 206802.
- [108] Li D B, Ning C Z. Peculiar features of confinement factors in a metal-semiconductor waveguide [J]. *Applied Physics Letters*, 2010, 96(18): 181109.
- [109] Noda S. Seeking the ultimate nanolaser [J]. *Science*, 2006, 314(5797): 260-261.
- [110] Ma R M, Oulton R F. Applications of nanolasers [J]. *Nature Nanotechnology*, 2019, 14(1): 12-22.
- [111] Ning C Z. What is laser threshold? [J]. *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics*, 2013, 19(4): 1503604.
- [112] Chow W W, Reitzenstein S. Quantum-optical influences in optoelectronics: an introduction [J]. *Applied Physics Reviews*, 2018, 5(4): 041302.
- [113] Purcell E M. Spontaneous emission probabilities at radio frequencies bt-confined electrons and photons: new physics and applications[M]. Boston: Springer, 1995: 839.
- [114] Stockman M I. The spaser as a nanoscale quantum generator and ultrafast amplifier [J]. *Journal of Optics*, 2010, 12(2): 024004.
- [115] Lau E K, Lakhani A, Tucker R S, et al. Enhanced modulation bandwidth of nanocavity light emitting devices[J]. *Optics Express*, 2009, 17(10): 7790-7799.
- [116] Perahia R, Alegre T P M, Safavi-Naeini A H, et al. Surface-plasmon mode hybridization in subwavelength microdisk lasers[J]. *Applied Physics Letters*, 2009, 95(20): 201114.
- [117] Lu C Y, Chang S W, Chuang S L, et al. Metal-cavity surface-emitting microlaser at room temperature[J]. *Applied Physics Letters*, 2010, 96(25): 251101.
- [118] Yu K, Lakhani A, Wu M C. Subwavelength metal-optic semiconductor nanopatch lasers [J]. *Optics Express*, 2010, 18(9): 8790-8799.
- [119] Khajavikhan M, Simic A, Katz M, et al. Thresholdless nanoscale coaxial lasers [J]. *Nature*, 2012, 482(7384): 204-207.
- [120] Keshmarzi E K, Tait R N, Berini P. Single-mode surface plasmon distributed feedback lasers [J]. *Nanoscale*, 2018, 10(13): 5914-5922.
- [121] Lakhani A M, Kim M K, Lau E K, et al. Plasmonic crystal defect nanolaser [J]. *Optics Express*, 2011, 19(19): 18237-18245.
- [122] Marell M J H, Smalbrugge B, Geluk E J, et al. Plasmonic distributed feedback lasers at telecommunications wavelengths [J]. *Optics Express*, 2011, 19(16): 15109-15118.
- [123] Suh J Y, Kim C H, Zhou W, et al. Plasmonic bowtie nanolaser arrays[J]. *Nano Letters*, 2012, 12(11): 5769-5774.
- [124] Zhu W Q, Xu T, Wang H Z, et al. Surface plasmon polariton laser based on a metallic trench Fabry-Perot resonator[J]. *Science Advances*, 2017, 3(10): e1700909.
- [125] Shen K C, Ku C T, Hsieh C, et al. Deep-ultraviolet hyperbolic metacavity laser [J]. *Advanced Materials*, 2018, 30(21): 1706918.
- [126] Zhang Q, Li G Y, Liu X F, et al. A room temperature low-threshold ultraviolet plasmonic nanolaser [J]. *Nature Communications*, 2014, 5: 4953.
- [127] Chou Y H, Wu Y M, Hong K B, et al. High-operation-temperature plasmonic nanolasers on single-crystalline aluminum [J]. *Nano Letters*, 2016, 16(5): 3179-3186.
- [128] Wang S, Wang X Y, Li B, et al. Unusual scaling laws for plasmonic nanolasers beyond the diffraction limit[J]. *Nature Communications*, 2017, 8: 1889.
- [129] Lu Y J, Kim J, Chen H Y, et al. Plasmonic nanolaser using epitaxially grown silver film [J]. *Science*, 2012, 337(6093): 450-453.
- [130] Lu Y J, Wang C Y, Kim J, et al. All-color plasmonic nanolasers with ultralow thresholds: autotuning mechanism for single-mode lasing [J]. *Nano Letters*, 2014, 14(8): 4381-4388.
- [131] Hayenga W E, Garcia-Gracia H, Hodaei H, et al. Second-order coherence properties of metallic

- nanolasers[J]. *Optica*, 2016, 3(11): 1187-1193.
- [132] Pan S H, Gu Q, Amili A E, et al. Dynamic hysteresis in a coherent high- β nanolaser [J]. *Optica*, 2016, 3(11): 1260-1265.
- [133] Wang S, Chen H Z, Ma R M. High performance plasmonic nanolasers with external quantum efficiency exceeding 10% [J]. *Nano Letters*, 2018, 18(12): 7942-7948.
- [134] Hill M T. Electrically pumped metallic and plasmonic nanolasers[J]. *Chinese Physics B*, 2018, 27(11): 114210.
- [135] Hill M T, Oei Y S, Smalbrugge B, et al. Lasing in metallic-coated nanocavities[J]. *Nature Photonics*, 2007, 1(10): 589-594.
- [136] Ding K, Liu Z C, Yin L J, et al. Electrical injection, continuous wave operation of subwavelength-metallic-cavity lasers at 260 K [J]. *Applied Physics Letters*, 2011, 98(23): 231108.
- [137] Lee J H, Khajavikhan M, Simic A, et al. Electrically pumped sub-wavelength metallo-dielectric pedestal pillar lasers[J]. *Optics Express*, 2011, 19(22): 21524-21531.
- [138] Ding K, Hill M T, Liu Z C, et al. Record performance of electrical injection sub-wavelength metallic-cavity semiconductor lasers at room temperature[J]. *Optics Express*, 2013, 21(4): 4728-4733.
- [139] Yang X, Ni P N, Jing P T, et al. Room temperature electrically driven ultraviolet plasmonic lasers [J]. *Advanced Optical Materials*, 2019, 7(10): 1801681.
- [140] Fedyanin D Y, Krasavin A V, Arsenin A V, et al. Lasing at the nanoscale: coherent emission of surface plasmons by an electrically driven nanolaser [J]. *Nanophotonics*, 2020, 9(12): 3965-3975.
- [141] Ma R M, Oulton R F, Sorger V J, et al. Room-temperature sub-diffraction-limited plasmon laser by total internal reflection[J]. *Nature Materials*, 2011, 10(2): 110-113.
- [142] MacDonald K F, Sámsón Z L, Stockman M I, et al. Ultrafast active plasmonics [J]. *Nature Photonics*, 2009, 3(1): 55-58.
- [143] Ni C Y A, Chuang S L. Theory of high-speed nanolasers and nanoLEDs [J]. *Optics Express*, 2012, 20(15): 16450-16470.
- [144] Pan S H, Deka S S, El Amili A, et al. Nanolasers: second-order intensity correlation, direct modulation and electromagnetic isolation in array architectures [J]. *Progress in Quantum Electronics*, 2018, 59: 1-18.
- [145] Shore K A. Modulation bandwidth of metal-clad semiconductor nanolasers with cavity-enhanced spontaneous emission [J]. *Electronics Letters*, 2010, 46(25): 1688-1689.
- [146] Suhr T, Gregersen N, Yvind K, et al. Modulation response of nanoLEDs and nanolasers exploiting Purcell enhanced spontaneous emission[J]. *Optics Express*, 2010, 18(11): 11230-11241.
- [147] Sidiropoulos T P H, Roder R, Geburt S, et al. Ultrafast plasmonic nanowire lasers near the surface plasmon frequency[J]. *Proceedings of SPIE*, 2015, 9546: 95460W.
- [148] Meng X, Guler U, Kildishev A V, et al. Unidirectional spaser in symmetry-broken plasmonic core-shell nanocavity[J]. *Scientific Reports*, 2013, 3: 1241.
- [149] Meng X G, Kildishev A V, Fujita K, et al. Wavelength-tunable spasing in the visible[J]. *Nano Letters*, 2013, 13(9): 4106-4112.
- [150] Ning C Z. *Semiconductor nanowire lasers*[M]. Salt Lake City: Academic Press, 2012, 86: 455-468.
- [151] Yan R X, Gargas D, Yang P D. Nanowire photonics[J]. *Nature Photonics*, 2009, 3(10): 569-576.
- [152] Couteau C, Larrue A, Wilhelm C, et al. Nanowire lasers[J]. *Nanophotonics*, 2015, 4(1): 90-107.
- [153] Quan L N, Kang J, Ning C Z, et al. Nanowires for photonics[J]. *Chemical Reviews*, 2019, 119(15): 9153-9169.
- [154] Ning C Z. Nanolasers: current status of the trailblazer of synergetics [M] // Wunner G, Pelster A. *Selforganization in complex systems: the past, present, and future of synergetics. Understanding complex systems*. Cham: Springer, 2016: 109-128.
- [155] Ding K, Ning C Z. Metallic subwavelength-cavity semiconductor nanolasers [J]. *Light: Science & Applications*, 2012, 1(7): e20.
- [156] Ding K, Ning C Z. Fabrication challenges of electrical injection metallic cavity semiconductor nanolasers [J]. *Semiconductor Science and Technology*, 2013, 28(12): 124002.
- [157] Gwo S, Shih C K. Semiconductor plasmonic nanolasers: current status and perspectives [J]. *Reports on Progress in Physics. Physical Society*, 2016, 79(8): 086501.
- [158] Ma R M, Oulton R F, Sorger V J, et al. Plasmon lasers: coherent light source at molecular scales[J]. *Laser & Photonics Reviews*, 2013, 7(1): 1-21.
- [159] Gu Q, Fainman Y. *Semiconductor nanolasers*[M]. Cambridge: Cambridge University Press, 2017.
- [160] Hill M T, Gather M C. Advances in small lasers [J]. *Nature Photonics*, 2014, 8(12): 908-918.

- [161] Berini P, de Leon I. Surface plasmon-polariton amplifiers and lasers[J]. *Nature Photonics*, 2012, 6(1): 16-24.
- [162] Wu S, Buckley S, Schaibley J R, et al. Monolayer semiconductor nanocavity lasers with ultralow thresholds[J]. *Nature*, 2015, 520(7545): 69-72.
- [163] Li Y Z, Zhang J X, Huang D D, et al. Room-temperature continuous-wave lasing from monolayer molybdenum ditelluride integrated with a silicon nanobeam cavity [J]. *Nature Nanotechnology*, 2017, 12(10): 987-992.
- [164] Wang Z, Sun H, Zhang Q Y, et al. Excitonic complexes and optical gain in two-dimensional molybdenum ditelluride well below the Mott transition [J]. *Light, Science & Applications*, 2020, 9: 39.
- [165] Zhao J X, Su R, Fieramosca A, et al. Ultralow threshold polariton condensate in a monolayer semiconductor microcavity at room temperature[J]. *Nano Letters*, 2021, 21(7): 3331-3339.
- [166] Su R, Wang J, Zhao J X, et al. Room temperature long-range coherent exciton polariton condensate flow in lead halide perovskites [J]. *Science Advances*, 2018, 4(10): eaau0244.
- [167] Su R, Diederichs C, Wang J, et al. Room-temperature polariton lasing in all-inorganic perovskite nanoplatelets [J]. *Nano Letters*, 2017, 17(6): 3982-3988.
- [168] Lin K B, Xing J, Quan L N, et al. Perovskite light-emitting diodes with external quantum efficiency exceeding 20 percent [J]. *Nature*, 2018, 562(7726): 245-248.

Introduction to Nanolasers

Xu Jialu^{1,2}, Ning Cunzheng^{1,2*}, Xiong Qihua^{3,4**}

¹*Department of Electronic Engineering, Tsinghua University, Beijing 100084, China;*

²*Tsinghua International Center for Nano-Optoelectronics, Tsinghua University, Beijing 100084, China;*

³*State Key Laboratory of Low-Dimensional Quantum Physics, Department of Physics, Tsinghua University, Beijing 100084, China;*

⁴*Beijing Academy of Quantum Information Sciences, Beijing 100193, China*

Abstract

Significance The laser has had a revolutionary impact on scientific research and technological applications since it was invented more than 60 years ago. Extensive theoretical and application research has been conducted, and many important developments have been reported. For example, the size of lasers has both increased and decreased. The linear dimensions of lasers have increased by more than 10 orders of magnitude, and ultra-small semiconductor lasers that are uniquely important for many applications have been developed.

Driven by Moore's law, continuous progress of microelectronics technology has resulted in unprecedented challenges and requirements. Developments in microelectronics technology have presented significant possibilities related to the transition from electronics to photonics for information transmission and processing. However, the field of integrated nanophotonics, particular in relation to lasers, still faces obstacles, including dimensions, energy consumption, and integration with silicon photonic devices. Currently, semiconductor lasers are generally more than tens of microns. To be more compatible with electronic devices, the size must be reduced by two to three orders of magnitude. According to system level analysis, the energy consumption of on-chip optical interconnection needs to be less than 10 fJ/bit, and the data transfer rate must be greater than 10 Gbit/s. Studies have shown that the power-to-bandwidth ratio decreases as the device size decreases. Silicon is an indirect bandgap semiconductor that emits light inefficiently; thus, it is necessary to integrate lasers based on other materials with silicon-based electronic chips. Nanoscale lasers have the potential to overcome the influences of mechanical strain caused by lattice mismatch and to be integrated with silicon. Therefore, the development of nanolasers is significant no matter which aspect is considered.

In addition to the on-chip interconnection required by future information technology, detection, sensing and high-definition display based on nanolasers are also important application areas. Currently, continuous miniaturization and stable operation under electrical pumping are being pursued. The emergence of novel cavity designs and gain materials have created new opportunities for nanolaser research.

Progress The emergence of semiconductor nanolasers followed naturally from the development of semiconductor lasers. Since first developed in 1962, semiconductor lasers have undergone several breakthroughs in cavity designs, and each breakthrough has led to improved performance, lower thresholds, reduced size, and the appearance of new application scenarios. The early semiconductor laser cavity based on the Fabry-Pérot etalon was naturally formed by the crystal cleavage plane. In the 1970s and 1980s, the distributed feedback laser and distributed Bragg reflection (DBR) laser with distributed feedback mechanisms were developed. These developments had a decisive influence on reducing the laser threshold, improving the monochromaticity, and increasing the modulation speed, and such developments played a critical role in the use of semiconductor lasers in the field of optical communications. The vertical cavity surface emitting laser based on the DBR structure appeared in the 1980s, followed by various microcavity concepts in the 1990s, and subsequently photonic crystal lasers. In the 21st century, the development of ever smaller lasers has led to many novel nanoscale laser designs. The typical feature of these lasers is that, in at least one dimension, the size is on the order of submicron or much shorter, representing the dawn of the nanolaser age. Nanolasers are primarily divided into two categories. One category is represented by lasers based on various nanomaterials and nanostructures, such as nanowires, nanobelts, and nanofilms (Figs. 1 and Figs. 2). In 2001, Yang's research group realized an ultraviolet laser based on ZnO nanowires at room temperature for the first time. The other category is lasers based on a plasmonic mode at the metal-dielectric interface (Figs. 4 and Figs. 5). Plasmonic devices use free electron oscillations on the metal surface to enhance light confinement, which allows the size of laser to break the diffraction limit. In 2009, three teams independently demonstrated the first plasmonic nanolasers, or spasers, with different structures based on a surface-plasmon polariton mode or a localized surface-plasmon mode.

Conclusions and Prospect Lasers with ever decreasing sizes, i. e., down to nanoscales, or nanolasers, have evolved rapidly in recent years. We briefly describe the historical background of nanolasers including various types, their basic features, possible applications, current status, existing problems, and future trends. The types of nanocavities include nanowire cavities, whispery-gallery mode cavities, Fabry-Pérot cavities, as well as surface-plasmon polariton cavities. The types of gain media include conventional compound semiconductors as well as newly emerging materials, such as perovskites and transition-metal dichalcogenides.

Key words optoelectronics; semiconductor laser; microcavity device; plasma; nanophotonics and photonic crystal; subwavelength structure; semiconductor

OCIS codes 250.5960; 140.3948; 250.5403; 350.4238; 050.6624; 130.5990